

7 16
**VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM
GEBIET DES PATENTWESENS**

PCT

REC'D 23 MAY 2001

WIPO

PCT

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

(Artikel 36 und Regel 70 PCT)



Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts Le A 33 817.WO Lin	WEITERES VORGEHEN siehe Mitteilung über die Übersendung des internationalen vorläufigen Prüfungsberichts (Formblatt PCT/IPEA/416)	
Internationales Aktenzeichen PCT/EP00/06178	Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) 03/07/2000	Prioritätsdatum (Tag/Monat/Tag) 13/07/1999
Internationale Patentklassifikation (IPK) oder nationale Klassifikation und IPK C08K5/01		
Anmelder BAYER AKTIENGESELLSCHAFT		

1. Dieser internationale vorläufige Prüfungsbericht wurde von der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde erstellt und wird dem Anmelder gemäß Artikel 36 übermittelt.
2. Dieser **BERICHT** umfaßt insgesamt 5 Blätter einschließlich dieses Deckblatts.
☐ Außerdem liegen dem Bericht **ANLAGEN** bei; dabei handelt es sich um Blätter mit Beschreibungen, Ansprüchen und/oder Zeichnungen, die geändert wurden und diesem Bericht zugrunde liegen, und/oder Blätter mit vor dieser Behörde vorgenommenen Berichtigungen (siehe Regel 70.16 und Abschnitt 607 der Verwaltungsrichtlinien zum PCT).

Diese Anlagen umfassen insgesamt Blätter.

3. Dieser Bericht enthält Angaben zu folgenden Punkten:

- I ☒ Grundlage des Berichts
- II ☐ Priorität
- III ☐ Keine Erstellung eines Gutachtens über Neuheit, erfinderische Tätigkeit und gewerbliche Anwendbarkeit
- IV ☐ Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung
- V ☒ Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung
- VI ☐ Bestimmte angeführte Unterlagen
- VII ☐ Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung
- VIII ☐ Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung

Datum der Einreichung des Antrags 05/01/2001	Datum der Fertigstellung dieses Berichts 21.05.2001
Name und Postanschrift der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde:  Europäisches Patentamt D-80298 München Tel. +49 89 2399 - 0 Tx: 523656 epmu d Fax: +49 89 2399 - 4465	Bevollmächtigter Bediensteter Von Kuzenko, M Tel. Nr. +49 89 2399 8605 

I. Grundlage des Berichts

1. Hinsichtlich der **Bestandteile** der internationalen Anmeldung (*Ersatzblätter, die dem Anmeldeamt auf eine Aufforderung nach Artikel 14 hin vorgelegt wurden, gelten im Rahmen dieses Berichts als "ursprünglich eingereicht" und sind ihm nicht beigelegt, weil sie keine Änderungen enthalten (Regeln 70.16 und 70.17)*):
Beschreibung, Seiten:

1-16 ursprüngliche Fassung

Patentansprüche, Nr.:

1-10 ursprüngliche Fassung

2. Hinsichtlich der **Sprache**: Alle vorstehend genannten Bestandteile standen der Behörde in der Sprache, in der die internationale Anmeldung eingereicht worden ist, zur Verfügung oder wurden in dieser eingereicht, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.

Die Bestandteile standen der Behörde in der Sprache: zur Verfügung bzw. wurden in dieser Sprache eingereicht; dabei handelt es sich um

- ☐ die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen Recherche eingereicht worden ist (nach Regel 23.1(b)).
- ☐ die Veröffentlichungssprache der internationalen Anmeldung (nach Regel 48.3(b)).
- ☐ die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen vorläufigen Prüfung eingereicht worden ist (nach Regel 55.2 und/oder 55.3).

3. Hinsichtlich der in der internationalen Anmeldung offenbarten **Nucleotid- und/oder Aminosäuresequenz** ist die internationale vorläufige Prüfung auf der Grundlage des Sequenzprotokolls durchgeführt worden, das:

- ☐ in der internationalen Anmeldung in schriftlicher Form enthalten ist.
- ☐ zusammen mit der internationalen Anmeldung in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- ☐ bei der Behörde nachträglich in schriftlicher Form eingereicht worden ist.
- ☐ bei der Behörde nachträglich in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- ☐ Die Erklärung, daß das nachträglich eingereichte schriftliche Sequenzprotokoll nicht über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung im Anmeldezeitpunkt hinausgeht, wurde vorgelegt.
- ☐ Die Erklärung, daß die in computerlesbarer Form erfassten Informationen dem schriftlichen Sequenzprotokoll entsprechen, wurde vorgelegt.

4. Aufgrund der Änderungen sind folgende Unterlagen fortgefallen:

- ☐ Beschreibung, Seiten:
- ☐ Ansprüche, Nr.:
- ☐ Zeichnungen, Blatt:

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

Internationales Aktenzeichen PCT/EP00/06178

5. ☐ Dieser Bericht ist ohne Berücksichtigung (von einigen) der Änderungen erstellt worden, da diese aus den angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde über den Offenbarungsgehalt in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgehen (Regel 70.2(c)).

(Auf Ersatzblätter, die solche Änderungen enthalten, ist unter Punkt 1 hinzuweisen; sie sind diesem Bericht beizufügen).

6. Etwaige zusätzliche Bemerkungen:

V. Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung

1. Feststellung

Neuheit (N)	Ja: Ansprüche	1-10
	Nein: Ansprüche	
Erfinderische Tätigkeit (ET)	Ja: Ansprüche	1-10
	Nein: Ansprüche	
Gewerbliche Anwendbarkeit (GA)	Ja: Ansprüche	1-10
	Nein: Ansprüche	

2. Unterlagen und Erklärungen
siehe Beiblatt

cf V

D1: EP-A-0 699 713 (BAYER AG) 6. März 1996 (1996-03-06)

D2: US-A-5 018 828 (OHDAIRA AKIO ET AL) 28. Mai 1991 (1991-05-28)

1. Der vorliegende Hauptanspruch umfaßt Polycarbonatformmassen mit einem Gehalt an Kohlenwasserstoffen mit 15 bis 600 Kohlenstoffatomen, dadurch gekennzeichnet, daß diese Kohlenwasserstoffe in Mengen von 0,005 bis 5,0 Gew-% bezogen auf das Gewicht der gesamten Formmasse enthalten sind, und diese Kohlenwasserstoffe aus methylverzweigten Alkanketten bestehen, wobei sie einen Gewichtsanteil von Verzweigungen zwischen 5 Gew % und 30 Gew % bezogen auf die Kohlenstoffe der Kette aufweisen.

Besonders bevorzugt ist gemäß Anspruch 6 Squalan (30 C-Atome).

2. D1 offenbart Mischungen aus speziellen Polycarbonaten und 0.5 bis 15 Gew.% aliphatischem Kohlenwasserstoff mit einem Molgewicht von 300 bis 3.000 g/mol, besonders bevorzugt Mineralöl oder Paraffinöl.
Die aliphatischen Kohlenwasserstoffe sind gemäß Seite 6, Zeile 6 bis 13 verzweigte oder unverzweigte Gemische von aliphatischen oder cycloaliphatischen Kohlenwasserstoffen.

Es wird festgestellt, daß die Mischungen eine verbesserte Fließfähigkeit bei nur geringer Beeinträchtigung der Wärmeformbeständigkeit zeigen und daß bei zusätzlicher Beimischung von Terpolymeren mit Epoxygruppen die Schlagzähigkeit noch weiter ansteigt.

D1 offenbart **nicht explizit** Mischungen von Polycarbonaten und von **methylverzweigten** Alkanketten.

Daher ist der Gegenstand von Anspruch 1 als neu zu bewerten.

Die in D1 gelöste Aufgabe unterscheidet sich deutlich von der Aufgabe der vorliegenden Erfindung, nämlich der verzugsfreien Entformung von Polycarbonatformteilen (Seite 2, Zeilen 5 bis 13). Der Fachmann hatte demnach keine Veranlassung D1 zur Lösung der gestellten Aufgabe in Betracht zu ziehen.

3. D2 beschreibt optische Fasern, wobei der Faserkern, der aus Polycarbonat bestehen kann, mit einer Schicht bedeckt ist, welche unter anderem Squalan enthält. Eine Mischung aus Polycarbonat und Squalan ist nicht offenbart.
4. Der Gegenstand des Hauptanspruches erfüllt somit die Erfordernisse der Artikel 33(2) und 33(3) PCT.

PATENT COOPERATION TREATY

PCT

NOTIFICATION OF ELECTION

(PCT Rule 61.2)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

Commissioner
 US Department of Commerce
 United States Patent and Trademark
 Office, PCT
 2011 South Clark Place Room
 CP2/5C24
 Arlington, VA 22202
 ETATS-UNIS D'AMERIQUE
 in its capacity as elected Office

Date of mailing (day/month/year) 20 February 2001 (20.02.01)	
International application No. PCT/EP00/06178	Applicant's or agent's file reference Le A 33 817.WO Lin
International filing date (day/month/year) 03 July 2000 (03.07.00)	Priority date (day/month/year) 13 July 1999 (13.07.99)
Applicant EBERT, Wolfgang et al	

1. The designated Office is hereby notified of its election made:

☒ in the demand filed with the International Preliminary Examining Authority on:
 05 January 2001 (05.01.01)

☐ in a notice effecting later election filed with the International Bureau on:

2. The election ☒ was

☐ was not

made before the expiration of 19 months from the priority date or, where Rule 32 applies, within the time limit under Rule 32.2(b).

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland Facsimile No.: (41-22) 740.14.35	Authorized officer Olivia TEFY Telephone No.: (41-22) 338.83.38
---	---

(12) NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES
PATENTWESENS (PCT) VERÖFFENTLICHTE INTERNATIONALE ANMELDUNG

(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum
Internationales Büro



(43) Internationales Veröffentlichungsdatum
18. Januar 2001 (18.01.2001)

PCT

(10) Internationale Veröffentlichungsnummer
WO 01/04199 A1

(51) Internationale Patentklassifikation?: C08K 5/01,
C08L 69/00

Joachim [DE/DE]; An Holthausens Kull 15, D-47803
Krefeld (DE).

(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP00/06178

(74) Gemeinsamer Vertreter: BAYER AKTIENGE-
SELLSCHAFT; D-51368 Leverkusen (DE).

(22) Internationales Anmeldedatum:
3. Juli 2000 (03.07.2000)

(81) Bestimmungsstaaten (*national*): AE, AG, AL, AM, AT,
AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CR, CU,
CZ, DE, DK, DM, DZ, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM,
HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK,
LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX,
MZ, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL,
TJ, TM, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZA, ZW.

(25) Einreichungssprache: Deutsch

(26) Veröffentlichungssprache: Deutsch

(30) Angaben zur Priorität:
199 32 170.1 13. Juli 1999 (13.07.1999) DE

(84) Bestimmungsstaaten (*regional*): ARIPO-Patent (GH,
GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZW), eura-
sisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM),
europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI,
FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OAPI-Patent
(BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE,
SN, TD, TG).

(71) Anmelder (*für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme
von US*): BAYER AKTIENGESELLSCHAFT [DE/DE];
D-51368 Leverkusen (DE).

(72) Erfinder; und

(75) Erfinder/Anmelder (*nur für US*): EBERT, Wolfgang
[DE/DE]; Doerperhofstrasse 31, D-47800 Krefeld (DE).
KAUFMANN, Ralf [DE/DE]; Egerstrasse 5, D-47228
Duisburg (DE). SCHWEMLER, Christoph [DE/DE];
Am Kloster 35, D-42799 Leichlingen (DE). HAESE,
Wilfried [DE/DE]; Osenauer Strasse 32, D-51519 Oden-
thal (DE). FISCHER, Peter [DE/DE]; Mülhenbach
28, D-50676 Köln (DE). DÖBLER, Martin [DE/DE];
Flotow-Strasse 13, D-40593 Düsseldorf (DE). GENZ,

Veröffentlicht:

— Mit internationalem Recherchenbericht.

Zur Erklärung der Zweibuchstaben-Codes, und der anderen
Abkürzungen wird auf die Erklärungen ("Guidance Notes on
Codes and Abbreviations") am Anfang jeder regulären Ausgabe
der PCT-Gazette verwiesen.

(54) Title: POLYCARBONATE MOLDING COMPOUNDS WITH GOOD DEMOLDING PROPERTIES AND MOLDED BOD-
IES AND SEMIFINISHED PRODUCTS PRODUCED FROM THE SAME

(54) Bezeichnung: POLYCARBONATFORMMASSEN MIT GUTER ENTFORMUNG UND DARAUS HERGESTELLTE
FORMKÖRPER UND HALBZEUGE

(57) Abstract: The invention relates to polycarbonate molding compounds with good demolding properties. Said molding com-
pounds contain methyl-branched alkanes or alkane mixtures as the demolding agents, optionally in addition to other usual additives
for polycarbonates.

(57) Zusammenfassung: Gegenstand der vorliegenden Erfindung sind gut entformende Polycarbonatformmassen mit methylver-
zweigten Alkanen oder Alkanmischungen als Entformungsmitteln, gegebenenfalls neben anderen Polycarbonat-üblichen Additiven.

WO 01/04199 A1



1

2

3

4

Polycarbonatformmassen mit guter Entformung und daraus hergestellte Formkörper und Halbzeuge

5 Gegenstand der vorliegenden Erfindung sind gut entformende Polycarbonatformmassen mit methylverzweigten Alkanen oder Alkanmischungen als Entformungsmitteln, gegebenfalls neben anderen Polycarbonat-üblichen Additiven.

10 Patente und Veröffentlichungen, die die entformende Wirkung von Additiven in Thermoplasten allgemein und insbesondere Polycarbonat beschreiben, sind zahlreich/legion. Die am häufigsten als Entformungsmittel eingesetzten Substanzen sind die Ester aus langkettigen aliphatischen Säuren und Alkoholen. Beispielhaft seien hier die Verwendung von Estern aus Fettsäurealkoholen oder Polyolen wie z. B. Pentaerythrit mit Fettsäuren genannt, wie sie in DE 33 12 158, EP 100 918, EP 103 107, EP 561 629, EP 352 458, EP 436 117 beschrieben werden oder wenn
15 Guerbetalkohole benutzt wurden US 5 001 180, DE 33 12 157, US 5 744 626. Alle diese Ester haben den Nachteil, daß sie in Abhängigkeit von katalytisch wirkenden Verunreinigungen und der Verarbeitungstemperatur zu Umesterungen mit dem Polycarbonat neigen. Dieses wird gerade bei den für kurze Cycluszeiten notwendigen hohen Massetemperaturen deutlich.

20 Andere Entformungsmittel die diesen Nachteil nicht haben wie langkettige Ketone, neigen durch Eigenkondensation zur Bildung von Chromophoren und sind schwer zugänglich (EP 100 918).

25 Siloxane die ebenfalls verwendet werden (US 4 536 590, US 4 390 651, US 3 751 519) besitzen eine ausreichende Temperaturbeständigkeit sind jedoch sehr schlecht mit Polycarbonat verträglich und führen in den zur Wirksamkeit notwendigen Konzentrationen zu Trübungen.

30 α -Olefinpolymerisate (EP 561 630, EP 230 015) mit verbleibenden Doppelbindungen (DE 32 44 499) sind nicht farbstabil, bei hydrierten Systemen

besteht ebenfalls wie bei den langkettigen Alkanen (US 4 415 696) ein Verträglichkeitsproblem mit Polycarbonat, außerdem ist die wachsartige oft teils flüssige teils wächserne Konsistenz dieser Produkte hinderlich.

5 Die verzugsfreie Entformung von Polycarbonatformteilen, unter Erhalt der sehr hochwertigen Oberfläche, stellt durch die Forderungen nach kürzeren Cyclusezeiten und höheren Verarbeitungstemperaturen, bei immer komplizierter werdenden Formen, eine immer währende Herausforderung dar. Viele Probleme lassen sich oft nur mit einer maßgeschneiderten Entformungsrezeptur bewältigen. Es besteht daher
10 ein beständiger Bedarf an neuen potentiellen Entformungsmitteln. Die Aufgabe bestand daher darin Entformungsmittel zu finden, die nicht zu Umesterungen mit dem Polycarbonat neigen, andererseits jedoch auch keine Formenbeläge bilden und in den wirksamen Konzentrationen nicht zu Trübungen oder Verfärbungen führen.

15 Die Aufgabe bestand daher darin, eine gut entformende Formmasse zu entwickeln, die neben hervorragenden Entformungseigenschaften und Transparenz über genügende Temperaturstabilität ohne Verfärbung oder Umesterung verfügt.

Die Aufgabe wurde gelöst durch die Verwendung von methylverzweigten Alkanen
20 die über eine ausreichende Löslichkeit und Stabilität in Polycarbonat verfügen.

Gegenstand der vorliegenden Erfindung sind Polycarbonatformmassen mit einem Gehalt an Kohlenwasserstoffen mit 15 bis 600 Kohlenstoffatomen wobei diese Kohlenwasserstoffe in Mengen von 0,005 bis 5,0 Gew-% bezogen auf das Gewicht
25 der gesamten Formmasse enthalten sind, und diese Kohlenwasserstoffe aus methylverzweigten Alkanketten bestehen, wobei sie einen Gewichtsanteil von Verzweigungen zwischen 5 Gew % und 30 Gew % bezogen auf die Kohlenstoffe der Kette aufweisen.

30 Der bevorzugte Gehalt an Kohlenwasserstoffen beträgt 0,01 bis 2,0 Gew-%, ganz besonders bevorzugt 0,02 bis 1,0 Gew-%.

Kohlenwasserstoffe mit 15 bis 100 Kohlenstoffatomen sind ebenfalls bevorzugt, besonders bevorzugt sind solche mit 15 bis 40 Kohlenstoffatomen.

Die erfindungsgemäßen Kohlenwasserstoffe bestehen besonders bevorzugt aus Alkanen an denen die Kohlenstoffe der verzweigenden Methylgruppen einen Gewichtsanteil, bezogen auf die Kohlenstoffe der Kette, zwischen 10 Gew % und 30 Gew % haben, besonders bevorzugt sind solche, die, in diesem Fall vor Hydrierung, aus Isopreneinheiten, besonders bevorzugt zu mehr als 90 % hydrierte Isopreneinheiten, ganz besonders bevorzugt zu mehr als 95 % hydrierte Isopreneinheiten gegebenfalls unter Verwendung von Comonomeren, insbesondere 2,3-Dimethylbutadien, Butadien, Propen und/oder Isobuten, im Bereich von 0-50 Mol % (bezogen auf die Isopreneinheiten), insbesondere jedoch solche die, vor Sättigung der Doppelbindungen, formal aus Isopreneinheiten aufgebaut sind, wobei solche bevorzugt sind die 15, 20, 25, 30, 35 oder 40-C-Atomen enthalten oder deren Mischungen, ganz besonders bevorzugt ist Squalan, (30 C-Atome).

Gegebenfalls können die Polycarbonatformmassen mit anderen in Polycarbonat üblichen Additiven versetzt werden, wie z.B. Thermostabilisatoren, UV/IR-Stabilisatoren, anderen Entformungsmitteln, Flammenschutzmitteln, Antidrippingmitteln, Gleitmitteln, Fließhilfsmitteln, Füllstoffen, Farbmitteln wie Pigmenten oder Farbkonzentraten, Glasfasern, Füllstoffen und Blendpartnern wie ABS, SAN, EPDM oder Polyestern auf Basis von Terephthalsäure und Diolen.

Die erfindungsgemäßen Formmassen können mit Verunreinigungen, die die einzelnen Bestandteile der Formmasse aus ihrer Synthese, Aufarbeitung, Verarbeitung und Lagerung enthalten, sowie Kontaminationen die während der Herstellung oder Verarbeitung der erfindungsgemäßen Formmassen stammen, verunreinigt sein. Das Ziel ist es jedoch mit so sauberen Produkten wie möglich zu arbeiten.

Erfindungsgemäße Alkane sind solche natürlichen oder synthetischen Ursprungs mit seitenständigen Methylgruppen und insgesamt 15 bis 600 Kohlenstoffatomen, bevorzugt 15 bis 100 Kohlenstoffatomen, wobei auch Mischungen dieser Kohlenwasserstoffe Gegenstand des Patentes sind. Bevorzugt sind Kohlenwasserstoffe die
5 formal oder durch tatsächliche Synthese zu 50-100 Mol% aus Isopreneinheiten aufgebaut sind, d.h. diese C_5 -Einheit enthalten nach Sättigung der nach der Polymerisation verbleibenden Doppelbindungen, mit der Maßgabe, daß die Kohlenstoffe der verzweigenden Methylgruppen einen Gewichtsanteil, bezogen auf die Kohlenstoffe der Kette, zwischen 10 Gew % und 30 Gew %, bevorzugt zwischen 10 Gew %
10 und 30 Gew %, haben. Comonomere, wie sie neben Isopren verwendet werden können sind solche wie sie in der Gummiherstellung und Polyolefinchemie üblich sind, besonders 2,3-Dimethylbutadien, Butadien, Propen und/oder Isobuten. Besonders bevorzugt sind solche gesättigten Aliphaten wie sie rein rechnerisch, vor Sättigung der verbleibenden Doppelbindungen, aus Isopren über „Kopf-Kopf“- oder „Kopf-Schwanz“-Verknüpfung entstehen, wobei auch beide Verknüpfungsarten neben-
15 einander vorkommen können, insbesondere Squalan.

Verwendet werden können auch Mischungen der erfindungsgemäßen Kohlenwasserstoffe gegebenenfalls auch mit Beimischungen von anderen, auch linearen
20 Alkanen zwischen 0 und 30 Gew-%, bezogen auf die Menge erfindungsgemäßer Alkane.

Die verwendeten Alkane sollten möglichst geringe Reste an Doppelbindungen haben wünschenswert sind Jodzahlen unter 10, möglichst unter 5.

25 Die erfindungsgemäßen Alkane sind handelsüblich und können im Chemikalienhandel beschafft werden.

Thermoplastische, aromatische Polycarbonate im Sinne der vorliegenden Erfindung
30 sind sowohl Homopolycarbonate als auch Copolycarbonate; die Polycarbonate können in bekannter Weise linear oder verzweigt sein.

Ein Teil, bis zu 80 Mol-%, vorzugsweise von 20 Mol-% bis zu 50 Mol-% der Carbonat-Gruppen in den erfindungsgemäß geeigneten Polycarbonaten können durch aromatische Dicarbonsäureester-Gruppen ersetzt sein. Derartige Polycarbonate, die sowohl Säurereste der Kohlensäure als auch Säurereste von aromatischen Dicarbonsäuren in die Molekülkette eingebaut enthalten, sind, genau bezeichnet, aromatische Polyester-carbonate. Sie sollen der Einfachheit halber in vorliegender Anmeldung unter dem Oberbegriff der thermoplastischen, aromatischen Polycarbonate subsumiert werden.

Die Herstellung der erfindungsgemäß zu verwendenden Polycarbonate erfolgt in bekannter Weise aus Diphenolen, Kohlensäurederivaten, gegebenenfalls Kettenabbrechern und gegebenenfalls Verzweigern, wobei zur Herstellung der Polyester-carbonate ein Teil der Kohlensäurederivate durch aromatische Dicarbonsäuren oder Derivate der Dicarbonsäuren ersetzt wird, und zwar je nach Maßgabe der in den aromatischen Polycarbonaten zu ersetzenden Carbonatstruktureinheiten durch aromatische Dicarbonsäureesterstruktureinheiten.

Einzelheiten der Herstellung von Polycarbonaten sind in Hunderten von Patentschriften seit etwa 40 Jahren niedergelegt. Beispielhaft sei hier nur auf

20

- Schnell, "Chemistry and Physics of Polycarbonates", Polymer Reviews, Volume 9, Interscience Publishers, New York, London, Sydney 1964;

25

- D.C. Prevorsek, B.T. Debona und Y. Kesten, Corporate Research Center, Allied Chemical Corporation, Morristown, New Jersey 07960: "Synthesis of Poly(ester Carbonate) Copolymers" in Journal of Polymer Science, Polymer Chemistry Edition, Vol. 19, 75-90 (1980)";

30

- D. Freitag, U. Grigo, P.R. Müller, N. Nouvertne', BAYER AG, "Polycarbonates" in Encyclopedia of Polymer Science and Engineering, Volume 11, Second Edition, 1988, Seiten 648-718 und schließlich

- Dres. U. Grigo, K. Kircher und P. R. Müller "Polycarbonate" in Becker/Braun, Kunststoff-Handbuch, Band 3/1, Polycarbonate, Polyacetale, Polyester, Celluloseester, Carl Hanser Verlag München, Wien 1992, Seiten 117-299 verwiesen.

5

Die thermoplastischen Polycarbonate einschließlich der thermoplastischen, aromatischen Polyestercarbonate haben mittlere Molekulargewichte M_w (ermittelt durch Messung der relativen Viskosität bei 25°C in CH_2Cl_2 und einer Konzentration von 0,5 g pro 100 ml CH_2Cl_2) von 12 000 bis 120 000, vorzugsweise von 15 000 bis 80 000 und insbesondere von 15 000 bis 60 000.

10

Für die Herstellung der erfindungsgemäß zu verwendenden Polycarbonate geeignete Diphenole sind beispielsweise Hydrochinon, Resorcin, Dihydroxydiphenyl, Bis-(hydroxyphenyl)-alkane, Bis(hydroxy-phenyl)-cycloalkane, Bis-(hydroxyphenyl)-sulfide, Bis-(hydroxyphenyl)-ether, Bis-(hydroxyphenyl)-ketone, Bis-(hydroxyphenyl)-sulfone, Bis-(hydroxyphenyl)-sulfoxide, (α,α' -Bis-(hydroxyphenyl)-diisopropylbenzole, sowie deren kernalkylierte und kernhalogenierte Verbindungen.

15

Bevorzugte Diphenole sind 4,4'-Dihydroxydiphenyl, 2,2-Bis-(4-hydroxyphenyl)-1-phenyl-propan, 1,1-Bis-(4-hydroxyphenyl)-phenyl-ethan, 2,2-Bis-(4-hydroxyphenyl)propan, 2,4-Bis-(4-hydroxyphenyl)-2-methylbutan, 1,1-Bis-(4-hydroxyphenyl)-m/p diisopropylbenzol, 2,2-Bis-(3-methyl-4-hydroxyphenyl)-propan, Bis-(3,5-dimethyl-4-hydroxyphenyl)-methan, 2,2-Bis-(3,5-dimethyl-4-hydroxyphenyl)-propan, Bis-(3,5-dimethyl-4-hydroxyphenyl)-sulfon, 2,4-Bis-(3,5-dimethyl-4-hydroxyphenyl)-2-methylbutan, 1,1-Bis-(3,5-dimethyl-4-hydroxyphenyl)-m/p-diisopropyl-benzol, 2,2- und 1,1-Bis-(4-hydroxyphenyl)-3,3,5-trimethylcyclohexan.

20

25

Besonders bevorzugte Diphenole sind 4,4'-Dihydroxydiphenyl, 1,1-Bis-(4-hydroxyphenyl)-phenyl-ethan, 2,2-Bis-(4-hydroxyphenyl)-propan, 2,2-Bis(3,5-dimethyl-4-hydroxyphenyl)-propan, 1,1-Bis-(4-hydroxyphenyl)-cyclohexan, 1,1-Bis-

30

(4-hydroxyphenyl)-m/p diisopropylbenzol und 1,1-Bis-(4-hydroxyphenyl)-3,3,5-trimethylcyclohexan.

5 Diese und weitere geeignete Diphenole sind z.B. in den US-PS 3 028 635, 2 999 835, 3 148 172, 2 991 273, 3 271 367, 4 982 014 und 2 999 846, in den deutschen Offenlegungsschriften 1 570 703, 2 063 050, 2 036 052, 2 211 956 und 3 832 396, der französischen Patentschrift 1 561 518, in der Monographie "H. Schnell, Chemistry and Physics of Polycarbonates, Interscience Publishers, New York 1964" sowie in den japanischen Offenlegungsschriften 62039/1986, 62040/1986 und
10 105550/1986 beschrieben.

Im Falle der Homopolycarbonate wird nur ein Diphenol eingesetzt, im Falle der Copolycarbonate werden mehrere Diphenole eingesetzt, wobei selbstverständlich die verwendeten Bisphenole, wie auch alle anderen der Synthese zugesetzten Chemi-
15 kalien und Hilfsstoffe mit den aus ihrer eigenen Synthese stammenden Verunreinigungen kontaminiert sein können, obwohl es wünschenswert ist, mit möglichst sauberen Rohstoffen zu arbeiten.

Geeignete Kettenabbrecher sind sowohl Monophenole als auch Monocarbonsäuren.
20 Geeignete Monophenole sind Phenol, Alkylphenole wie Kresole, p-tert. Butylphenol, p-n-Octylphenol, p-iso-Octylphenol, p-n-Nonylphenol und p-iso-Nonylphenol, Halogenphenole wie p-Chlorphenol, 2,4-Dichlorphenol, p-Bromphenol und 2,4,6-Tribromphenol, bzw. deren Mischungen.

25 Geeignete Monocarbonsäuren sind Benzoesäure, Alkylbenzoesäuren und Halogenbenzoesäuren.

Bevorzugte Kettenabbrecher sind die Phenole der Formel (I)

30
$$R^6 - \text{Ph} - \text{OH} \quad (\text{I})$$

worin R⁶ für H oder einen verzweigten oder unverzweigten C₁- C₁₈-Alkylrest steht.

Die Menge an einzusetzendem Kettenabbrecher beträgt 0,5 Mol-% bis 10 Mol-%, bezogen auf Mole an jeweils eingesetzten Diphenolen. Die Zugabe der Kettenabbrecher kann vor, während oder nach der Phosgenierung erfolgen.

Geeignete Verzweiger sind die in der Polycarbonatchemie bekannten tri- oder mehr als trifunktionellen Verbindungen, insbesondere solche mit drei oder mehr als drei phenolischen OH-Gruppen.

10

Geeignete Verzweiger sind beispielsweise Phloroglucin, 4,6-Dimethyl-2,4,6-tri-(4-hydroxyphenyl)-hepten-2,4,6-Dimethyl-2,4,6-tri-(4-hydroxyphenyl)-heptan, 1,3,5-Tri-(4-hydroxyphenyl)-benzol, 1,1,1-Tri-(4-hydroxyphenyl)-ethan, Tri-(4-hydroxyphenyl)-phenylmethan, 2,2-Bis-[4,4-bis-(4-hydroxyphenyl)-cyclohexyl]-propan, 2,4-Bis-(4-hydroxyphenyl-isopropyl)-phenol, 2,6-Bis-(2-hydroxy-5'-methylbenzyl)-4-methylphenol, 2-(4-Hydroxyphenyl)-2-(2,4-dihydroxyphenyl)-propan, Hexa-(4-(4-hydroxyphenyl-isopropyl)phenyl)-orthoterephthalsäureester, Tetra-(4-hydroxyphenyl)-methan, Tetra-(4-(4-hydroxy-phenyl-isopropyl)-phenoxy)-methan und 1,4-Bis(4',4''-dihydroxy-triphenyl)-methyl)-benzol sowie 2,4-Dihydroxybenzoesäure, Trimesinsäure, Cyanurchlorid und 3,3-Bis-(3-methyl-4-hydroxyphenyl)-2-oxo-2,3-dihydroindol.

15

20

Die Menge der gegebenenfalls einzusetzenden Verzweiger beträgt 0,05 Mol-% bis 2,5 Mol-%, bezogen wiederum auf Mole an jeweils eingesetzten Diphenolen.

25

Die Verzweiger können entweder mit den Diphenolen und den Kettenabbrechern in der wäßrig alkalischen Phase vorgelegt werden, oder in einem organischen Lösungsmittel gelöst vor der Phosgenierung zugegeben werden.

30

Alle diese Maßnahmen zur Herstellung der Polycarbonate sind dem Fachmann geläufig.

Für die Herstellung der Polyestercarbonate geeignete aromatische Dicarbonsäuren sind beispielsweise Phthalsäure, Terephthalsäure, Isophthalsäure, tert.-Butylisophthalsäure, 3,3'-Diphenyldicarbonsäure, 4,4'-Diphenyldicarbonsäure, 4,4-Benzophenondicarbonsäure, 3,4'-Benzophenondicarbonsäure, 4,4'-Diphenyletherdicarbonsäure, 4,4'-Diphenylsulfondicarbonsäure, 2,2-Bis-(4-carboxyphenyl)-propan, Trimethyl-3-phenylindan-4,5'-dicarbonsäure.

Von den aromatischen Dicarbonsäuren werden besonders bevorzugt die Terephthalsäure und/oder Isophthalsäure eingesetzt.

10

Derivate der Dicarbonsäuren sind die Dicarbonsäuredihalogenide und die Dicarbonsäuredialkylester, insbesondere die Dicarbonsäuredichloride und die Dicarbonsäuredimethylester.

15

Der Ersatz der Carbonatgruppen durch die aromatischen Dicarbonsäureestergruppen erfolgt im wesentlichen stöchiometrisch und auch quantitativ, so daß das molare Verhältnis der Reaktionspartner sich auch im fertigen Polyestercarbonat wiederfindet. Der Einbau der aromatischen Dicarbonsäureestergruppen kann sowohl statistisch als auch blockweise erfolgen.

20

Bevorzugte Herstellungsweisen der erfindungsgemäß zu verwendenden Polycarbonate, einschließlich der Polyestercarbonate, sind das bekannte Grenzflächenverfahren und das bekannte Schmelzumesterungsverfahren.

25

Im ersten Fall dient als Kohlensäurederivat vorzugsweise Phosgen, im letzteren Fall vorzugsweise Diphenylcarbonat. Katalysatoren, Lösungsmittel, Aufarbeitung, Reaktionsbedingungen etc. für die Polycarbonatherstellung sind in beiden Fällen hinreichend beschrieben und bekannt.

30

Die Herstellung der erfindungsgemäßen Formmassen durch Zugabe der erfindungsgemäßen Alkane während der Synthese in die Schmelze oder im Falle des

Phasengrenzflächenprozesses einem Aufarbeitungs- oder Konzentrierungsschrittes, aber auch in Lösung erfolgen, indem man die Polycarbonate, gelöst in einem Polycarbonatlösungsmittel, simultan oder sukzessive mit den erfindungsgemäßen Alkanen und gegebenenfalls weiteren Additiven versetzt und das Polycarbonatlösungsmittel anschließend abdampft.

- 10 Gegenstand der vorliegenden Erfindung ist somit auch ein Verfahren zur Herstellung der erfindungsgemäßen Polycarbonatformmassen, das dadurch gekennzeichnet ist, daß man Polycarbonate mit den erfindungsgemäßen Alkanen entweder simultan oder sukzessive, entweder in Substanz oder in Lösung, vermischt, und danach die Gemische entweder bei Temperaturen zwischen 260°C und 360°C schmelz-compoundiert oder bei Temperaturen zwischen 250°C und 320°C schmelzextrudiert, oder die Polycarbonatlösungen eindampft und das erhaltene Gemisch granuliert.
- 15 Die erfindungsgemäßen Polycarbonatformmassen können noch die üblichen Additive, wie Glasfasern, Füllstoffe, Pigmente, UV-, Thermo-Stabilisatoren, Antioxidantien und andere Entformungsmittel, in den für thermoplastische Polycarbonate üblichen Mengen enthalten.
- 20 Geeignete Glasfasern sind alle im Handel erhältlichen Glasfasersorten und -typen, also geschnittene Glassorten Langglasfasern (chopped strands) und Kurzglas (milled fibres), sofern sie durch geeignete Schichten Polycarbonat - verträglich ausgerüstet sind.
- 25 Die zur Herstellung der Formmassen verwendeten Glasfasern sind aus E - Glas hergestellt. Unter E - Glas versteht man nach DIN 1259 ein Aluminium - Bor - Silikat - Glas, mit einem Alkalioxid - Gehalt unter 1 Gew. -% . Üblicherweise werden Glasfasern mit einem Durchmesser von 8 bis 20 µm und einer Länge von 3 bis 6 mm(chopped strands) verwendet . Es kann auch Kurzglas zum Einsatz kommen.(milled fibres), ebenso geeignete Glaskugeln.
- 30

Flammschutzmittel wie sie z. B. in Polycarbonat Verwendung finden und auch in den erfindungsgemäßen Formmassen verwendet werden können, sind Alkalisalze organischer und anorganischer Säuren, insbesondere Sulfonsäuren wie beispielsweise Natrium- oder Kalium-perfluorbutansulfonat, Kalium-hexafluoroaluminat, Natrium-hexafluoroaluminat, Kalium-diphenylsulfon-sulfonat, Natrium-2-formylbenzolsulfonat, Natrium-(N-benzolsulfonyl)-benzolsulfonamid, oft in Kombination mit anderen Flammschutzmitteln, wie halogenierte organische Verbindungen, Kryolith und Teflon. Ebenfalls sind Mischungen der genannten Additive geeignet.

10 Diese üblichen Additive können in bekannter Weise zusammen mit den erfindungsgemäßen Komponenten oder danach den flammwidrig auszurüstenden Polycarbonaten zugesetzt werden.

15 Die erfindungsgemäßen Polycarbonatformmassen können auf den üblichen Verarbeitungsmaschinen nach bekannten Methoden unter den für Polycarbonat üblichen Verarbeitungsparametern zu Formkörpern verarbeitet werden.

Gegenstand der Erfindung sind daher auch die aus den erfindungsgemäßen Formmassen gefertigten Teile wie Formteile und Halbzeuge.

20

Die Formteile finden beispielsweise Anwendung im Elektro-, Elektronik-, Beleuchtungs-, Computer-, Bau-, Fahrzeug- und/oder Flugzeugsektor.

Gegenstand der Erfindung sind daher auch die aus ihnen hergestellten Spritzguß- und Extrusionsartikel, wie beispielsweise optische Datenspeicher, wie CD's, DVD's und deren Weiterentwicklungen, Folien, Platten, Hohlkammerplatten, Leuchten, Gehäuse für Elektrogeräte, Computer oder Kraftfahrzeugausrüstungen wie Scheiben und Scheinwerferstreuscheiben, Armaturenbretteile, Verkleidungen und ähnliches besonders transparente Anwendungen wie CD's, DVD's und deren Weiterentwicklungen, Folien, Platten, Hohlkammerplatten, Leuchten, oder Kraft-

25

30

fahrzeugausrüstungen wie Scheiben und Scheinwerferstreuscheiben, insbesondere optische Datenspeicher, wie CD's, DVD's und deren Weiterentwicklungen.

Beispiele

Die Mengenangaben in den Beispielen, ausgedrückt in Gew.-%, beziehen sich auf das Gewicht der Gesamtmischung.

5

Beispiele 1 bis 7

10 Auf ein aromatisches Polycarbonat aus 2,2-Bis-(4-hydroxyphenyl)-propan ($\eta_{rel} = 1,293$) mit Phenol als Kettenabbrecher wurde 0,05 % bis 4,0 ppm erfindungsgemäßes Alkan aufgebracht und bei 280°C auf einem Doppelwellenextruder (ZSK 32/2) bei Vakuumentgasung aufgeschmolzen. Oder es wird das erfindungsgemäße Additiv, zusammen mit gegebenenfalls anderen Additiven direkt in die Polycarbonatschmelze dosiert. Der extrudierte Formmassenstrang wurde gekühlt und granuliert. Das Granulat wurde im Vakuumtrockenschrank bei 80°C für 24 h
15 getrocknet und auf einer Spritzgußmaschine des bei einer Massetemperatur von 300 °C immer das gleiche rotationssymmetrische Werkstück bei einer Formentemperatur von 100 °C abgespritzt. Anschließend wird durch die Kraft die notwendig ist das Formteil auszustossen , bzw. die notwendig ist das Formteil in der Form zu drehen, die Reibungskoeffizienten der Haft- und Gleitreibung bestimmt, die als Maß für die
20 entformende Wirkung herangezogen wurden. Kleinere Werte sind daher gegenüber hohen Werten vorteilhaft.

**Versuche 1 bis 5 : Entformungsversuche im 0.05% Entformungsmittel-Bereich,
wie in CD's üblich**

Versuch		1	2	3	4	5
Polycarbonat $\eta_{rel} = 1,193$	%	100	99,95-	99,95-	99,95-	99,95-
Entformungsmittel I	%	-	0,050		-	-
Entformungsmittel II	%			0,050	-	-
Aliphat A	%			-	0,050	-
Aliphat A (Reproduktion)	%					0,050
<u>Bestimmung des Reibungskoeffizienten</u>						
Haftreibungskoeffizient	N / mm ²	1,15	0,62	1,17	0,77	0,70
Gleitreibungskoeffizient	N / mm ²	0,84	0,67	0,93	0,76	0,73

5 Entformungsmittel I: Vergleich: Sehr gutes aber umesterungsaktives Entformungsmittel des Standes der Technik (GMS Glycerinmonostearat)

10 Entformungsmittel II: Vergleich: gutes, aber weniger umesterungsaktives Entformungsmittel des Standes der Technik (PETS = Pentaerythrittrastearat)

Aliphat A: Erfindungsgemäß; Hexamethyltetracosan, „Squalan“

15 Wie die Versuche zeigen, ist der erfindungsgemäße Entformer Hexamethyltetracosan „Squalan“ ein sehr wirksames Entformungsmittel bei Konzentrationen um 500 ppm, wie sie zum Beispiel in Formmassen für optische Speicher, also CD's, DVD's üblich sind.

Versuche zur Herstellung von CD's im Technikum

5 Aus den obigen erfindungsgemäßen Formmassen der Versuche 4 und 5 wurden auf einem CD-Werkzeug CD's mit einer Cycluszeit von 4 sec und einer Masse-temperatur von 320°C in einem Technikum hergestellt.

Es wurden keine Entformungsprobleme, Ablagerungen oder sonstige Störungen festgestellt.

10 **Versuche 6 bis 12:** Entformungsversuche im 0,1 % bis 0,4 % Entformungsmittel-Bereich, wie im Spritzguß üblich.

Versuch		6	7	8	9	10	11	12
Polycarbonat $\eta_{rel} = 1,293$	%	100	99,8	99,8	99,9	99,8	99,7	99,6
Entformer I	%		0,2					
Entformer II	%			0,2				
Aliphat A	%				0,1			
Aliphat A	%					0,2		
Aliphat A	%						0,3	
Aliphat A	%							0,4
<u>Bestimmung des Reibungskoeffizienten</u>								
Haftreibung- koeffizient		0,97	0,32	0,47	0,64	0,56	0,50	0,49
Gleitreibungk- oeffizient		0,73	0,39	0,58	0,65	0,58	0,50	0,49

Legende wie bei Beispielen 1-5

15 Die Versuche belegen, daß der erfindungsgemäße Entformer Hexamethyltetracosan „Squalan“ auch ein sehr wirksames Entformungsmittel bei Konzentrationen um 1000

bis 4000 ppm ist, wie sie zum Beispiel in Formmassen für Spritzgußartikel oder Halbzeuge die über Extrusion hergestellt werden üblich sind, also beispielhaft Streuscheiben und Platten zur verscheibung bei Automobilen, Platten, Folien, Leuchten, Gehäusen (z.B. für Computer).

Patentansprüche

1. Polycarbonatformmassen mit einem Gehalt an Kohlenwasserstoffen mit 15 bis 600 Kohlenstoffatomen, dadurch gekennzeichnet, daß
5 diese Kohlenwasserstoffe in Mengen von 0,005 bis 5,0 Gew-% bezogen auf das Gewicht der gesamten Formmasse enthalten sind,

und diese Kohlenwasserstoffe aus methylverzweigten Alkanketten bestehen,
10 wobei sie einen Gewichtsanteil von Verzweigungen zwischen 5 Gew % und 30 Gew % bezogen auf die Kohlenstoffe der Kette aufweisen.
2. Polycarbonatformmassen nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß 0,01 bis 2,0 Gew-%, bevorzugt 0,02 bis 1,0 Gew-% Kohlenwasserstoffe enthalten
15 sind.
3. Polycarbonatformmassen nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß zwischen 10 Gew % und 30 Gew % Verzweigungen vorliegen.
- 20 4. Polycarbonatformmassen nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die Kohlenwasserstoffe aus 15 bis 100 Kohlenstoffatomen, besonders aus 15 bis 40 Kohlenstoffatomen bestehen und ganz besonders Isopreneinheiten, bevorzugt hydrierte Isopreneinheiten, besonders bevorzugt zu mehr als 90 % hydrierte Isopreneinheiten, ganz besonders bevorzugt zu mehr als 95 %
25 hydrierte Isopreneinheiten enthalten,
5. Polycarbonatformmassen nach Anspruch 4, dadurch gekennzeichnet, daß zusätzlich zu den Isopreneinheiten noch 2,3-Dimethylbutadien, Butadien, Propen und/oder Isobuten, im Bereich von 0-50 Mol % (bezogen auf die
30 Isopreneinheiten), enthalten sind.

6. Polycarbonatformmassen nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die Kohlenwasserstoffe aus 15, 20, 25, 30, 35 oder 40-C-Atomen bestehen oder Mischungen der vorstehenden Kohlenwasserstoffe sind, ganz besonders bevorzugt Squalan (30 C-Atome).

5

7. ~~Polycarbonatformmassen nach einem der vorstehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß zusätzlich gegebenenfalls andere in Polycarbonat übliche Additive wie z.B. Thermostabilisatoren, UV/IR-Stabilisatoren, andere Entformungsmittel, Flammenschutzmittel, Antidrippingmittel, Gleitmittel, Fließhilfsmittel, Füllstoffe, Farbmittel wie Pigmenten oder Farbkonzentrate, Glasfasern, Füllstoffe und Blendpartner wie ABS, SAN, EPDM oder Polyester auf Basis von Terephthalsäure und Diolen enthalten sind.~~

10

8. Formmassen gemäß Anspruch 7, dadurch gekennzeichnet, daß die verwendeten Polycarbonate solche auf Basis von 4,4'-Dihydroxydiphenyl, 1,1-Bis-(4-hydroxyphenyl)-phenyl-ethan, 2,2-Bis-(4-hydroxyphenyl)-propan, 2,2-Bis(3,5-dimethyl-4-hydroxyphenyl)-propan, 1,1-Bis-(4-hydroxyphenyl)-m/p diisopropylbenzol, 1, 1 -Bis-(4-hydroxyphenyl)-cyclohexan und 1,1-Bis-(4-hydroxyphenyl)-3,3,5-trimethylcyclohexan sind.

20

9. Formmassen gemäß Anspruch 7 und/oder 8, dadurch gekennzeichnet, daß die verwendeten Polycarbonate solche auf Basis von 2,2-Bis-(4-hydroxyphenyl)-propan und / oder 1,1-Bis-(4-hydroxyphenyl)-3,3,5-trimethylcyclohexan und / oder 1,1-Bis-(4-hydroxyphenyl)-m/p diisopropylbenzol sind.

25

10. Formteile hergestellt aus den Formmassen gemäß einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 9, besonders optische Datenspeicher, wie CD's, DVD's und deren Weiterentwicklungen, Massivplatten, Hohlkammerplatten, Automobilverscheibungen, Streuscheiben, Leuchtenabdeckungen, ganz besonders bevorzugt CD's, DVD's und deren Weiterentwicklungen.

30

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No.

PCT/EP 00/06178

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
IPC 7 C08K5/01 C08L69/00

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
IPC 7 C08K C08L

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

EPO-Internal, CHEM ABS Data, WPI Data

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	EP 0 699 713 A (BAYER AG) 6 March 1996 (1996-03-06) abstract; claims; examples ---	1-3
A	US 5 018 828 A (OHDAIRA AKIO ET AL) 28 May 1991 (1991-05-28) abstract; claims; examples -----	1-10

☐ Further documents are listed in the continuation of box C.☒ Patent family members are listed in annex.

* Special categories of cited documents:

- "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- "E" earlier document but published on or after the international filing date
- "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

- "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
- "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
- "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.
- "&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

13 October 2000

Date of mailing of the international search report

23/10/2000

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl.
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Friederich, P

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/EP 00/06178

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
EP 0699713 A	06-03-1996	DE 4430947 A	07-03-1996
		DE 59507239 D	23-12-1999
		JP 8073727 A	19-03-1996
		US 5583174 A	10-12-1996
<hr/>			
US 5018828 A	28-05-1991	JP 1884204 C	10-11-1994
		JP 6010684 B	09-02-1994
		JP 62195606 A	28-08-1987
		CA 1290175 A	08-10-1991
		DE 3785470 A	27-05-1993
		DE 3785470 T	09-12-1993
		EP 0234918 A	02-09-1987
		KR 9008606 B	26-11-1990
<hr/>			

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES
IPK 7 C08K5/01 C08L69/00

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)
IPK 7 C08K C08L

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

EPO-Internal, CHEM ABS Data, WPI Data

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	EP 0 699 713 A (BAYER AG) 6. März 1996 (1996-03-06) Zusammenfassung; Ansprüche; Beispiele ---	1-3
A	US 5 018 828 A (OHDAIRA AKIO ET AL) 28. Mai 1991 (1991-05-28) Zusammenfassung; Ansprüche; Beispiele -----	1-10



Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen



Siehe Anhang Patentfamilie

* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

"A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

"E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

"L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

"O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

"P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

"X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderscher Tätigkeit beruhend betrachtet werden

"Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderscher Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

"&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

13. Oktober 2000

Absendedatum des internationalen Recherchenberichts

23/10/2000

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde
Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Friederich, P

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 00/06178

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
EP 0699713 A	06-03-1996	DE 4430947 A	07-03-1996
		DE 59507239 D	23-12-1999
		JP 8073727 A	19-03-1996
		US 5583174 A	10-12-1996
<hr/>			
US 5018828 A	28-05-1991	JP 1884204 C	10-11-1994
		JP 6010684 B	09-02-1994
		JP 62195606 A	28-08-1987
		CA 1290175 A	08-10-1991
		DE 3785470 A	27-05-1993
		DE 3785470 T	09-12-1993
		EP 0234918 A	02-09-1987
		KR 9008606 B	26-11-1990
<hr/>			

(12) NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES
PATENTWESENS (PCT) VERÖFFENTLICHTE INTERNATIONALE ANMELDUNG

(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum
Internationales Büro



not. JS

(43) Internationales Veröffentlichungsdatum
18. Januar 2001 (18.01.2001)

PCT

(10) Internationale Veröffentlichungsnummer
WO 01/04199 A1

(51) Internationale Patentklassifikation⁷: C08K 5/01,
C08L 69/00

Joachim [DE/DE]; An Holthausens Kull 15, D-47803
Krefeld (DE).

(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP00/06178

(74) Gemeinsamer Vertreter: BAYER AKTIENGE-
SELLSCHAFT; D-51368 Leverkusen (DE).

(22) Internationales Anmeldedatum:
3. Juli 2000 (03.07.2000)

(81) Bestimmungsstaaten (*national*): AE, AG, AL, AM, AT,
AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CR, CU,
CZ, DE, DK, DM, DZ, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM,
HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK,
LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX,
MZ, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL,
TJ, TM, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZA, ZW.

(25) Einreichungssprache: Deutsch

(26) Veröffentlichungssprache: Deutsch

(30) Angaben zur Priorität:
199 32 170.1 13. Juli 1999 (13.07.1999) DE

(84) Bestimmungsstaaten (*regional*): ARIPO-Patent (GH,
GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZW), eura-
sisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM),
europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI,
FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OAPI-Patent
(BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE,
SN, TD, TG).

(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme
von US): BAYER AKTIENGESELLSCHAFT [DE/DE];
D-51368 Leverkusen (DE).

(72) Erfinder; und

(75) Erfinder/Anmelder (nur für US): EBERT, Wolfgang
[DE/DE]; Doerperhofstrasse 31, D-47800 Krefeld (DE).
KAUFMANN, Ralf [DE/DE]; Egerstrasse 5, D-47228
Duisburg (DE). SCHWEMLER, Christoph [DE/DE];
Am Kloster 35, D-42799 Leichlingen (DE). HAESE,
Wilfried [DE/DE]; Osenauer Strasse 32, D-51519 Oden-
thal (DE). FISCHER, Peter [DE/DE]; Mühlenbach
28, D-50676 Köln (DE). DÖBLER, Martin [DE/DE];
Flotow-Strasse 13, D-40593 Düsseldorf (DE). GENZ,

Veröffentlicht:

— Mit internationalem Recherchenbericht.

Zur Erklärung der Zweibuchstaben-Codes, und der anderen
Abkürzungen wird auf die Erklärungen ("Guidance Notes on
Codes and Abbreviations") am Anfang jeder regulären Ausgabe
der PCT-Gazette verwiesen.

(54) Title: POLYCARBONATE MOLDING COMPOUNDS WITH GOOD DEMOLDING PROPERTIES AND MOLDED BOD-
IES AND SEMIFINISHED PRODUCTS PRODUCED FROM THE SAME

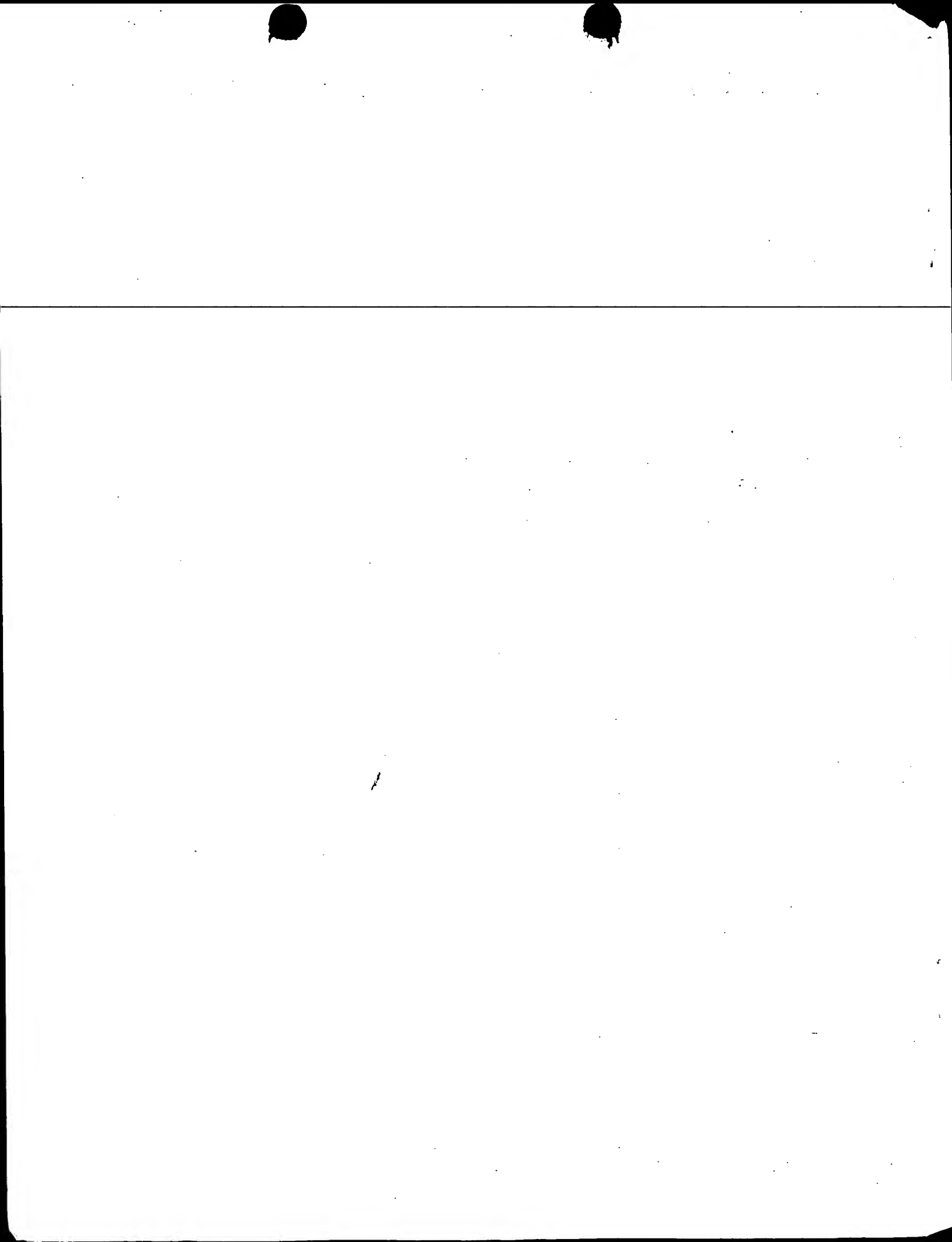
(54) Bezeichnung: POLYCARBONATFORMMASSEN MIT GUTER ENTFORMUNG UND DARAUS HERGESTELLTE
FORMKÖRPER UND HALBZEUGE

(57) Abstract: The invention relates to polycarbonate molding compounds with good demolding properties. Said molding com-
pounds contain methyl-branched alkanes or alkane mixtures as the demolding agents, optionally in addition to other usual additives
for polycarbonates.

(57) Zusammenfassung: Gegenstand der vorliegenden Erfindung sind gut entformende Polycarbonatformmassen mit methylver-
zweigten Alkanen oder Alkanmischungen als Entformungsmitteln, gegebenenfalls neben anderen Polycarbonat-üblichen Additiven.

WA 33817

WO 01/04199 A1



531 Rec'd PCT/PT 09 JAN 2002

Polycarbonatformmassen mit guter Entformung und daraus hergestellte Formkörper und Halbzeuge

5 Gegenstand der vorliegenden Erfindung sind gut entformende Polycarbonatformmassen mit methylverzweigten Alkanen oder Alkanmischungen als Entformungsmitteln, gegebenfalls neben anderen Polycarbonat-üblichen Additiven.

10 Patente und Veröffentlichungen, die die entformende Wirkung von Additiven in Thermoplasten allgemein und insbesondere Polycarbonat beschreiben, sind zahlreich/legion. Die am häufigsten als Entformungsmittel eingesetzten Substanzen sind die Ester aus langkettigen aliphatischen Säuren und Alkoholen. Beispielhaft seien hier die Verwendung von Estern aus Fettsäurealkoholen oder Polyolen wie z. B. Pentaerythrit mit Fettsäuren genannt, wie sie in DE 33 12 158, EP 100 918, EP 103 107, EP 561 629, EP 352 458, EP 436 117 beschrieben werden oder wenn
15 Guerbetalkohole benutzt wurden US 5 001 180, DE 33 12 157, US 5 744 626. Alle diese Ester haben den Nachteil, daß sie in Abhängigkeit von katalytisch wirkenden Verunreinigungen und der Verarbeitungstemperatur zu Umesterungen mit dem Polycarbonat neigen. Dieses wird gerade bei den für kurze Cyclusezeiten notwendigen hohen Massetemperaturen deutlich.

20

Andere Entformungsmittel die diesen Nachteil nicht haben wie langkettige Ketone, neigen durch Eigenkondensation zur Bildung von Chromophoren und sind schwer zugänglich (EP 100 918).

25

Siloxane die ebenfalls verwendet werden (US 4 536 590, US 4 390 651, US 3 751 519) besitzen eine ausreichende Temperaturbeständigkeit sind jedoch sehr schlecht mit Polycarbonat verträglich und führen in den zur Wirksamkeit notwendigen Konzentrationen zu Trübungen.

30

α -Olefinpolymerisate (EP 561 630, EP 230 015) mit verbleibenden Doppelbindungen (DE 32 44 499) sind nicht farbstabil, bei hydrierten Systemen

besteht ebenfalls wie bei den langkettigen Alkanen (US 4 415 696) ein Verträglichkeitsproblem mit Polycarbonat, außerdem ist die wachsartige oft teils flüssige teils wächserne Konsistenz dieser Produkte hinderlich.

5 Die verzugsfreie Entformung von Polycarbonatformteilen, unter Erhalt der sehr hochwertigen Oberfläche, stellt durch die Forderungen nach kürzeren Cyclusezeiten und höheren Verarbeitungstemperaturen, bei immer komplizierter werdenden Formen, eine immer währende Herausforderung dar. Viele Probleme lassen sich oft nur mit einer maßgeschneiderten Entformungsrezeptur bewältigen. Es besteht daher
10 ein beständiger Bedarf an neuen potentiellen Entformungsmitteln. Die Aufgabe bestand daher darin Entformungsmittel zu finden, die nicht zu Umesterungen mit dem Polycarbonat neigen, andererseits jedoch auch keine Formenbeläge bilden und in den wirksamen Konzentrationen nicht zu Trübungen oder Verfärbungen führen.

15 Die Aufgabe bestand daher darin, eine gut entformende Formmasse zu entwickeln, die neben hervorragenden Entformungseigenschaften und Transparenz über genügende Temperaturstabilität ohne Verfärbung oder Umesterung verfügt.

Die Aufgabe wurde gelöst durch die Verwendung von methylverzweigten Alkanen
20 die über eine ausreichende Löslichkeit und Stabilität in Polycarbonat verfügen.

Gegenstand der vorliegenden Erfindung sind Polycarbonatformmassen mit einem Gehalt an Kohlenwasserstoffen mit 15 bis 600 Kohlenstoffatomen wobei diese Kohlenwasserstoffe in Mengen von 0,005 bis 5,0 Gew-% bezogen auf das Gewicht
25 der gesamten Formmasse enthalten sind, und diese Kohlenwasserstoffe aus methylverzweigten Alkanketten bestehen, wobei sie einen Gewichtsanteil von Verzweigungen zwischen 5 Gew % und 30 Gew % bezogen auf die Kohlenstoffe der Kette aufweisen.

30 Der bevorzugte Gehalt an Kohlenwasserstoffen beträgt 0,01 bis 2,0 Gew-%, ganz besonders bevorzugt 0,02 bis 1,0 Gew-%.

Kohlenwasserstoffe mit 15 bis 100 Kohlenstoffatomen sind ebenfalls bevorzugt, besonders bevorzugt sind solche mit 15 bis 40 Kohlenstoffatomen.

Die erfindungsgemäßen Kohlenwasserstoffe bestehen besonders bevorzugt aus Alkanen an denen die Kohlenstoffe der verzweigenden Methylgruppen einen Gewichtsanteil, bezogen auf die Kohlenstoffe der Kette, zwischen 10 Gew % und 30 Gew % haben, besonders bevorzugt sind solche, die, in diesem Fall vor Hydrierung, aus Isopreneinheiten, besonders bevorzugt zu mehr als 90 % hydrierte Isopreneinheiten, ganz besonders bevorzugt zu mehr als 95 % hydrierte Isopreneinheiten gegebenfalls unter Verwendung von Comonomeren, insbesondere 2,3-Dimethylbutadien, Butadien, Propen und/oder Isobuten, im Bereich von 0-50 Mol % (bezogen auf die Isopreneinheiten), insbesondere jedoch solche die, vor Sättigung der Doppelbindungen, formal aus Isopreneinheiten aufgebaut sind, wobei solche bevorzugt sind die 15, 20, 25, 30, 35 oder 40-C-Atomen enthalten oder deren Mischungen, ganz besonders bevorzugt ist Squalan, (30 C-Atome).

Gegebenfalls können die Polycarbonatformmassen mit anderen in Polycarbonat üblichen Additiven versetzt werden, wie z.B. Thermostabilisatoren, UV/IR-Stabilisatoren, anderen Entformungsmitteln, Flammenschutzmitteln, Antidrippingmitteln, Gleitmitteln, Fließhilfsmitteln, Füllstoffen, Farbmitteln wie Pigmenten oder Farbkonzentraten, Glasfasern, Füllstoffen und Blendpartnern wie ABS, SAN, EPDM oder Polyestern auf Basis von Terephthalsäure und Diolen.

Die erfindungsgemäßen Formmassen können mit Verunreinigungen, die die einzelnen Bestandteile der Formmasse aus ihrer Synthese, Aufarbeitung, Verarbeitung und Lagerung enthalten, sowie Kontaminationen die während der Herstellung oder Verarbeitung der erfindungsgemäßen Formmassen stammen, verunreinigt sein. Das Ziel ist es jedoch mit so sauberen Produkten wie möglich zu arbeiten.

Erfindungsgemäße Alkane sind solche natürlichen oder synthetischen Ursprungs mit seitenständigen Methylgruppen und insgesamt 15 bis 600 Kohlenstoffatomen, bevorzugt 15 bis 100 Kohlenstoffatomen, wobei auch Mischungen dieser Kohlenwasserstoffe Gegenstand des Patentes sind. Bevorzugt sind Kohlenwasserstoffe die

5 formal oder durch tatsächliche Synthese zu 50-100 Mol% aus Isopreneinheiten aufgebaut sind, d.h. diese C_5 -Einheit enthalten nach Sättigung der nach der Polymerisation verbleibenden Doppelbindungen, mit der Maßgabe, daß die Kohlenstoffe der verzweigenden Methylgruppen einen Gewichtsanteil, bezogen auf die Kohlenstoffe der Kette, zwischen 10 Gew % und 30 Gew %, bevorzugt zwischen 10 Gew %

10 und 30 Gew %, haben. Comonomere, wie sie neben Isopren verwendet werden können sind solche wie sie in der Gummiherstellung und Polyolefinchemie üblich sind, besonders 2,3-Dimethylbutadien, Butadien, Propen und/oder Isobuten. Besonders bevorzugt sind solche gesättigten Aliphaten wie sie rein rechnerisch, vor Sättigung der verbleibenden Doppelbindungen, aus Isopren über „Kopf-Kopf“- oder „Kopf-

15 Schwanz“-Verknüpfung entstehen, wobei auch beide Verknüpfungsarten nebeneinander vorkommen können, insbesondere Squalan.

Verwendet werden können auch Mischungen der erfindungsgemäßen Kohlenwasserstoffe gegebenenfalls auch mit Beimischungen von anderen, auch linearen

20 Alkanen zwischen 0 und 30 Gew-%, bezogen auf die Menge erfindungsgemäßer Alkane.

Die verwendeten Alkane sollten möglichst geringe Reste an Doppelbindungen haben wünschenswert sind Jodzahlen unter 10, möglichst unter 5.

25 Die erfindungsgemäßen Alkane sind handelsüblich und können im Chemikalienhandel beschafft werden.

Thermoplastische, aromatische Polycarbonate im Sinne der vorliegenden Erfindung

30 sind sowohl Homopolycarbonate als auch Copolycarbonate; die Polycarbonate können in bekannter Weise linear oder verzweigt sein.

Ein Teil, bis zu 80 Mol-%, vorzugsweise von 20 Mol-% bis zu 50 Mol-% der Carbonat-Gruppen in den erfindungsgemäß geeigneten Polycarbonaten können durch aromatische Dicarbonsäureester-Gruppen ersetzt sein. Derartige Polycarbonate, die sowohl Säurereste der Kohlensäure als auch Säurereste von aromatischen Dicarbonsäuren in die Molekülkette eingebaut enthalten, sind, genau bezeichnet, aromatische Polyester-carbonate. Sie sollen der Einfachheit halber in vorliegender Anmeldung unter dem Oberbegriff der thermoplastischen, aromatischen Polycarbonate subsumiert werden.

Die Herstellung der erfindungsgemäß zu verwendenden Polycarbonate erfolgt in bekannter Weise aus Diphenolen, Kohlensäurederivaten, gegebenenfalls Kettenabbrechern und gegebenenfalls Verzweigern, wobei zur Herstellung der Polyester-carbonate ein Teil der Kohlensäurederivate durch aromatische Dicarbonsäuren oder Derivate der Dicarbonsäuren ersetzt wird, und zwar je nach Maßgabe der in den aromatischen Polycarbonaten zu ersetzenden Carbonatstruktureinheiten durch aromatische Dicarbonsäureesterstruktureinheiten.

Einzelheiten der Herstellung von Polycarbonaten sind in Hunderten von Patentschriften seit etwa 40 Jahren niedergelegt. Beispielhaft sei hier nur auf

- Schnell, "Chemistry and Physics of Polycarbonates", Polymer Reviews, Volume 9, Interscience Publishers, New York, London, Sydney 1964;
- D.C. Prevorsek, B.T. Debona und Y. Kesten, Corporate Research Center, Allied Chemical Corporation, Morristown, New Jersey 07960: "Synthesis of Poly(ester Carbonate) Copolymers" in Journal of Polymer Science, Polymer Chemistry Edition, Vol. 19, 75-90 (1980)";
- D. Freitag, U. Grigo, P.R. Müller, N. Nouvertne', BAYER AG, "Polycarbonates" in Encyclopedia of Polymer Science and Engineering, Volume 11, Second Edition, 1988, Seiten 648-718 und schließlich

- Dres. U. Grigo, K. Kircher und P. R- Müller "Polycarbonate" in Becker/Braun, Kunststoff-Handbuch, Band 3/1, Polycarbonate, Polyacetale, Polyester, Celluloseester, Carl Hanser Verlag München, Wien 1992, Seiten 117-299 verwiesen.

5

Die thermoplastischen Polycarbonate einschließlich der thermoplastischen, aromatischen Polyestercarbonate haben mittlere Molekulargewichte M_w (ermittelt durch Messung der relativen Viskosität bei 25°C in CH_2Cl_2 und einer Konzentration von 0,5 g pro 100 ml CH_2Cl_2) von 12 000 bis 120 000, vorzugsweise von 15 000 bis 80 000 und insbesondere von 15 000 bis 60 000.

10

Für die Herstellung der erfindungsgemäß zu verwendenden Polycarbonate geeignete Diphenole sind beispielsweise Hydrochinon, Resorcin, Dihydroxydiphenyl, Bis-(hydroxyphenyl)-alkane, Bis(hydroxy-phenyl)-cycloalkane, Bis-(hydroxyphenyl)-sulfide, Bis-(hydroxyphenyl)-ether, Bis-(hydroxyphenyl)-ketone, Bis-(hydroxyphenyl)-sulfone, Bis-(hydroxyphenyl)-sulfoxide, (α,α' -Bis-(hydroxyphenyl)-diisopropylbenzole, sowie deren kernalkylierte und kernhalogenierte Verbindungen.

15

Bevorzugte Diphenole sind 4,4'-Dihydroxydiphenyl, 2,2-Bis-(4-hydroxyphenyl)-1-phenyl-propan, 1,1-Bis-(4-hydroxyphenyl)-phenyl-ethan, 2,2-Bis-(4-hydroxyphenyl)propan, 2,4-Bis-(4-hydroxyphenyl)-2-methylbutan, 1,1-Bis-(4-hydroxyphenyl)-m/p diisopropylbenzol, 2,2-Bis-(3-methyl-4-hydroxyphenyl)-propan, Bis-(3,5-dimethyl-4-hydroxyphenyl)-methan, 2,2-Bis-(3,5-dimethyl-4-hydroxyphenyl)-propan, Bis-(3,5-dimethyl-4-hydroxyphenyl)-sulfon, 2,4-Bis-(3,5-dimethyl-4-hydroxyphenyl)-2-methylbutan, 1,1-Bis-(3,5-dimethyl-4-hydroxyphenyl)-m/p-diisopropyl-benzol, 2,2- und 1,1-Bis-(4-hydroxyphenyl)-3,3,5-trimethylcyclohexan.

20

25

Besonders bevorzugte Diphenole sind 4,4'-Dihydroxydiphenyl, 1,1-Bis-(4-hydroxyphenyl)-phenyl-ethan, 2,2-Bis-(4-hydroxyphenyl)-propan, 2,2-Bis(3,5-dimethyl-4-hydroxyphenyl)-propan, 1,1-Bis-(4-hydroxyphenyl)-cyclohexan, 1,1-Bis-

30

(4-hydroxyphenyl)-m/p diisopropylbenzol und 1,1-Bis-(4-hydroxyphenyl)-3,3,5-trimethylcyclohexan.

5 Diese und weitere geeignete Diphenole sind z.B. in den US-PS 3 028 635, 2 999 835, 3 148 172, 2 991 273, 3 271 367, 4 982 014 und 2 999 846, in den deutschen Offenlegungsschriften 1 570 703, 2 063 050, 2 036 052, 2 211 956 und 3 832 396, der französischen Patentschrift 1 561 518, in der Monographie "H. Schnell, Chemistry and Physics of Polycarbonates, Interscience Publishers, New York 1964" sowie in den japanischen Offenlegungsschriften 62039/1986, 62040/1986 und 10 105550/1986 beschrieben.

15 Im Falle der Homopolycarbonate wird nur ein Diphenol eingesetzt, im Falle der Copolycarbonate werden mehrere Diphenole eingesetzt, wobei selbstverständlich die verwendeten Bisphenole, wie auch alle anderen der Synthese zugesetzten Chemikalien und Hilfsstoffe mit den aus ihrer eigenen Synthese stammenden Verunreinigungen kontaminiert sein können, obwohl es wünschenswert ist, mit möglichst sauberen Rohstoffen zu arbeiten.

20 Geeignete Kettenabbrecher sind sowohl Monophenole als auch Monocarbonsäuren. Geeignete Monophenole sind Phenol, Alkylphenole wie Kresole, p-tert. Butylphenol, p-n-Octylphenol, p-iso-Octylphenol, p-n-Nonylphenol und p-iso-Nonylphenol, Halogenphenole wie p-Chlorphenol, 2,4-Dichlorphenol, p-Bromphenol und 2,4,6-Tribromphenol, bzw. deren Mischungen.

25 Geeignete Monocarbonsäuren sind Benzoesäure, Alkylbenzoesäuren und Halogenbenzoesäuren.

Bevorzugte Kettenabbrecher sind die Phenole der Formel (I)

30
$$R^6 - \text{Ph} - \text{OH} \quad (\text{I})$$

worin R^6 für H oder einen verzweigten oder unverzweigten C_1 - C_{18} -Alkylrest steht.

Die Menge an einzusetzendem Kettenabbrecher beträgt 0,5 Mol-% bis 10 Mol-%, bezogen auf Mole an jeweils eingesetzten Diphenolen. Die Zugabe der Ketten-

5 abbrecher kann vor, während oder nach der Phosgenierung erfolgen.

Geeignete Verzweiger sind die in der Polycarbonatchemie bekannten tri- oder mehr als trifunktionellen Verbindungen, insbesondere solche mit drei oder mehr als drei phenolischen OH-Gruppen.

10

Geeignete Verzweiger sind beispielsweise Phloroglucin, 4,6-Dimethyl-2,4,6-tri-(4-hydroxyphenyl)-hepten-2,4,6-Dimethyl-2,4,6-tri-(4-hydroxyphenyl)-heptan, 1,3,5-Tri-(4-hydroxyphenyl)-benzol, 1,1,1-Tri-(4-hydroxyphenyl)-ethan, Tri-(4-hydroxyphenyl)-phenylmethan, 2,2-Bis-[4,4-bis-(4-hydroxyphenyl)-cyclohexyl]-

15 propan, 2,4-Bis-(4-hydroxyphenyl-isopropyl)-phenol, 2,6-Bis-(2-hydroxy-5'-methylbenzyl)-4-methylphenol, 2-(4-Hydroxyphenyl)-2-(2,4-dihydroxyphenyl)-propan, Hexa-(4-(4-hydroxyphenyl-isopropyl)phenyl)-orthoterephthalsäureester, Tetra-(4-hydroxyphenyl)-methan, Tetra-(4-(4-hydroxy-phenyl-isopropyl)-phenoxy)-methan und 1,4-Bis(4',4''-dihydroxy-triphenyl)-methyl)-benzol sowie 2,4-Dihydroxybenzoe-

20 säure, Trimesinsäure, Cyanurchlorid und 3,3-Bis-(3-methyl-4-hydroxyphenyl)-2-oxo-2,3-dihydroindol.

Die Menge der gegebenenfalls einzusetzenden Verzweiger beträgt 0,05 Mol-% bis 2,5 Mol-%, bezogen wiederum auf Mole an jeweils eingesetzten Diphenolen.

25

Die Verzweiger können entweder mit den Diphenolen und den Kettenabbrechern in der wäßrig alkalischen Phase vorgelegt werden, oder in einem organischen Lösungsmittel gelöst vor der Phosgenierung zugegeben werden.

30

Alle diese Maßnahmen zur Herstellung der Polycarbonate sind dem Fachmann geläufig.

Für die Herstellung der Polyestercarbonate geeignete aromatische Dicarbonsäuren sind beispielsweise Phthalsäure, Terephthalsäure, Isophthalsäure, tert.-Butylisophthalsäure, 3,3'-Diphenyldicarbonsäure, 4,4'-Diphenyldicarbonsäure, 4,4-Benzophenondicarbonsäure, 3,4'-Benzophenondicarbonsäure, 4,4'-Diphenyletherdicarbonsäure, 4,4'-Diphenylsulfondicarbonsäure, 2,2-Bis-(4-carboxyphenyl)-propan, Trimethyl-3-phenylindan-4,5'-dicarbonsäure.

Von den aromatischen Dicarbonsäuren werden besonders bevorzugt die Terephthalsäure und/oder Isophthalsäure eingesetzt.

Derivate der Dicarbonsäuren sind die Dicarbonsäuredihalogenide und die Dicarbonsäuredialkylester, insbesondere die Dicarbonsäuredichloride und die Dicarbonsäuredimethylester.

Der Ersatz der Carbonatgruppen durch die aromatischen Dicarbonsäureestergruppen erfolgt im wesentlichen stöchiometrisch und auch quantitativ, so daß das molare Verhältnis der Reaktionspartner sich auch im fertigen Polyestercarbonat wiederfindet. Der Einbau der aromatischen Dicarbonsäureestergruppen kann sowohl statistisch als auch blockweise erfolgen.

Bevorzugte Herstellungsweisen der erfindungsgemäß zu verwendenden Polycarbonate, einschließlich der Polyestercarbonate, sind das bekannte Grenzflächenverfahren und das bekannte Schmelzumesterungsverfahren.

Im ersten Fall dient als Kohlensäurederivat vorzugsweise Phosgen, im letzteren Fall vorzugsweise Diphenylcarbonat. Katalysatoren, Lösungsmittel, Aufarbeitung, Reaktionsbedingungen etc. für die Polycarbonatherstellung sind in beiden Fällen hinreichend beschrieben und bekannt.

Die Herstellung der erfindungsgemäßen Formmassen durch Zugabe der erfindungsgemäßen Alkane während der Synthese in die Schmelze oder im Falle des

Phasengrenzflächenprozesses einem Aufarbeitungs- oder Konzentrierungsschrittes, aber auch in Lösung erfolgen, indem man die Polycarbonate, gelöst in einem Polycarbonatlösungsmittel, simultan oder sukzessive mit den erfindungsgemäßen Alkanen und gegebenenfalls weiteren Additiven versetzt und das Polycarbonatlösungsmittel anschließend abdampft.

- 10 Gegenstand der vorliegenden Erfindung ist somit auch ein Verfahren zur Herstellung der erfindungsgemäßen Polycarbonatformmassen, das dadurch gekennzeichnet ist, daß man Polycarbonate mit den erfindungsgemäßen Alkanen entweder simultan oder sukzessive, entweder in Substanz oder in Lösung, vermischt, und danach die Gemische entweder bei Temperaturen zwischen 260°C und 360°C schmelzcompoundiert oder bei Temperaturen zwischen 250°C und 320°C schmelzextrudiert, oder die Polycarbonatlösungen eindampft und das erhaltene Gemisch granuliert.
- 15 Die erfindungsgemäßen Polycarbonatformmassen können noch die üblichen Additive, wie Glasfasern, Füllstoffe, Pigmente, UV-, Thermo-Stabilisatoren, Antioxidantien und andere Entformungsmittel, in den für thermoplastische Polycarbonate üblichen Mengen enthalten.
- 20 Geeignete Glasfasern sind alle im Handel erhältlichen Glasfasersorten und -typen, also geschnittene Glassorten Langglasfasern (chopped strands) und Kurzglas (milled fibres), sofern sie durch geeignete Schichten Polycarbonat - verträglich ausgerüstet sind.
- 25 Die zur Herstellung der Formmassen verwendeten Glasfasern sind aus E - Glas hergestellt. Unter E - Glas versteht man nach DIN 1259 ein Aluminium - Bor - Silikat - Glas, mit einem Alkalioxid - Gehalt unter 1 Gew. -% . Üblicherweise werden Glasfasern mit einem Durchmesser von 8 bis 20 µm und einer Länge von 3 bis 6 mm(chopped strands) verwendet . Es kann auch Kurzglas zum Einsatz kommen.(milled fibres), ebenso geeignete Glaskugeln.
- 30

Flammschutzmittel wie sie z. B. in Polycarbonat Verwendung finden und auch in den erfindungsgemäßen Formmassen verwendet werden können, sind Alkalisalze organischer und anorganischer Säuren, insbesondere Sulfonsäuren wie beispielsweise Natrium- oder Kalium-perfluorbutansulfonat, Kalium-hexafluoroaluminat, Natrium-hexafluoroaluminat, Kalium-diphenylsulfon-sulfonat, Natrium-2-formylbenzolsulfonat, Natrium-(N-benzolsulfonyl)-benzolsulfonamid, oft in Kombination mit anderen Flammschutzmitteln, wie halogenierte organische Verbindungen, Kryolith und Teflon. Ebenfalls sind Mischungen der genannten Additive geeignet.

10 Diese üblichen Additive können in bekannter Weise zusammen mit den erfindungsgemäßen Komponenten oder danach den flammwidrig auszurüstenden Polycarbonaten zugesetzt werden.

15 Die erfindungsgemäßen Polycarbonatformmassen können auf den üblichen Verarbeitungsmaschinen nach bekannten Methoden unter den für Polycarbonat üblichen Verarbeitungsparametern zu Formkörpern verarbeitet werden.

Gegenstand der Erfindung sind daher auch die aus den erfindungsgemäßen Formmassen gefertigten Teile wie Formteile und Halbzeuge.

20 Die Formteile finden beispielsweise Anwendung im Elektro-, Elektronik-, Beleuchtungs-, Computer-, Bau-, Fahrzeug- und/oder Flugzeugsektor.

25 Gegenstand der Erfindung sind daher auch die aus ihnen hergestellten Spritzguß- und Extrusionsartikel, wie beispielsweise optische Datenspeicher, wie CD's, DVD's und deren Weiterentwicklungen, Folien, Platten, Hohlkammerplatten, Leuchten, Gehäuse für Elektrogeräte, Computer oder Kraftfahrzeugausrüstungen wie Scheiben und Scheinwerferstreuscheiben, Armaturenplatte, Verkleidungen und ähnliches besonders transparente Anwendungen wie CD's, DVD's und deren Weiterentwicklungen, Folien, Platten, Hohlkammerplatten, Leuchten, oder Kraft-

30

fahrzeugausrüstungen wie Scheiben und Scheinwerferstreuscheiben, insbesondere optische Datenspeicher, wie CD's, DVD's und deren Weiterentwicklungen.

Beispiele

Die Mengenangaben in den Beispielen, ausgedrückt in Gew.-%, beziehen sich auf das Gewicht der Gesamtmischung.

5

Beispiele 1 bis 7

Auf ein aromatisches Polycarbonat aus 2,2-Bis-(4-hydroxyphenyl)-propan ($\eta_{rel} = 1,293$) mit Phenol als Kettenabbrecher wurde 0,05 % bis 4,0 ppm
10 erfindungsgemäßes Alkan aufgebracht und bei 280°C auf einem Doppelwellenextruder (ZSK 32/2) bei Vakuumentgasung aufgeschmolzen. Oder es wird das erfindungsgemäße Additiv, zusammen mit gegebenenfalls anderen Additiven direkt in die Polycarbonatschmelze dosiert. Der extrudierte Formmassenstrang wurde gekühlt und granuliert. Das Granulat wurde im Vakuumtrockenschrank bei 80°C für 24 h
15 getrocknet und auf einer Spritzgußmaschine des bei einer Massetemperatur von 300 °C immer das gleiche rotationssymmetrische Werkstück bei einer Formentemperatur von 100 °C abgespritzt. Anschließend wird durch die Kraft die notwendig ist das Formteil auszustossen , bzw. die notwendig ist das Formteil in der Form zu drehen, die Reibungskoeffizienten der Haft- und Gleitreibung bestimmt, die als Maß für die
20 entformende Wirkung herangezogen wurden. Kleinere Werte sind daher gegenüber hohen Werten vorteilhaft!

**Versuche 1 bis 5 : Entformungsversuche im 0.05% Entformungsmittel-Bereich,
wie in CD's üblich**

Versuch		1	2	3	4	5
Polycarbonat $\eta_{rel} = 1,193$	%	100	99,95-	99,95-	99,95-	99,95-
Entformungsmittel I	%	-	0,050		-	-
Entformungsmittel II	%			0,050	-	-
Aliphat A	%			-	0,050	-
Aliphat A (Reproduktion)	%					0,050
<u>Bestimmung des Reibungskoeffizienten</u>						
Haftreibungskoeffizient	N / mm ²	1,15	0,62	1,17	0,77	0,70
Gleitreibungskoeffizient	N / mm ²	0,84	0,67	0,93	0,76	0,73

- 5 Entformungsmittel I: Vergleich: Sehr gutes aber umesterungsaktives Entformungsmittel des Standes der Technik (GMS Glycerinmonostearat)

- 10 Entformungsmittel II: Vergleich: gutes, aber weniger umesterungsaktives Entformungsmittel des Standes der Technik (PETS = Pentaerythrittrastearat)

Aliphat A: Erfindungsgemäß; Hexamethyltetracosan, „Squalan“

- 15 Wie die Versuche zeigen, ist der erfindungsgemäße Entformer Hexamethyltetracosan „Squalan“ ein sehr wirksames Entformungsmittel bei Konzentrationen um 500 ppm, wie sie zum Beispiel in Formmassen für optische Speicher, also CD's, DVD's üblich sind.

Versuche zur Herstellung von CD's im Technikum

Aus den obigen erfindungsgemäßen Formmassen der Versuche 4 und 5 wurden auf einem CD-Werkzeug CD's mit einer Cycluszeit von 4 sec und einer Masstemperatur von 320°C in einem Technikum hergestellt.

Es wurden keine Entformungsprobleme, Ablagerungen oder sonstige Störungen festgestellt.

Versuche 6 bis 12: Entformungsversuche im 0,1 % bis 0,4 % Entformungsmittelbereich, wie im Spritzguß üblich.

Versuch		6	7	8	9	10	11	12
Polycarbonat $\eta_{rel} = 1,293$	%	100	99,8	99,8	99,9	99,8	99,7	99,6
Entformer I	%		0,2					
Entformer II	%			0,2				
Aliphat A	%				0,1			
Aliphat A	%					0,2		
Aliphat A	%						0,3	
Aliphat A	%							0,4
<u>Bestimmung des Reibungskoeffizienten</u>								
Haftreibungskoeffizient		0,97	0,32	0,47	0,64	0,56	0,50	0,49
Gleitreibungskoeffizient		0,73	0,39	0,58	0,65	0,58	0,50	0,49

Legende wie bei Beispielen 1-5

Die Versuche belegen, daß der erfindungsgemäße Entformer Hexamethyltetracosan „Squalan“ auch ein sehr wirksames Entformungsmittel bei Konzentrationen um 1000

bis 4000 ppm ist, wie sie zum Beispiel in Formmassen für Spritzgußartikel oder Halbzeuge die über Extrusion hergestellt werden üblich sind, also beispielhaft Streuscheiben und Platten zur verscheibung bei Automobilen, Platten, Folien, Leuchten, Gehäusen (z.B. für Computer).

Patentansprüche

1. Polycarbonatformmassen mit einem Gehalt an Kohlenwasserstoffen mit 15 bis 600 Kohlenstoffatomen, dadurch gekennzeichnet, daß

5

diese Kohlenwasserstoffe in Mengen von 0,005 bis 5,0 Gew-% bezogen auf das Gewicht der gesamten Formmasse enthalten sind,

10

und diese Kohlenwasserstoffe aus methylverzweigten Alkanketten bestehen, wobei sie einen Gewichtsanteil von Verzweigungen zwischen 5 Gew % und 30 Gew % bezogen auf die Kohlenstoffe der Kette aufweisen.

2. Polycarbonatformmassen nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß 0,01 bis 2,0 Gew-%, bevorzugt 0,02 bis 1,0 Gew-% Kohlenwasserstoffe enthalten sind.

15

3. Polycarbonatformmassen nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß zwischen 10 Gew % und 30 Gew % Verzweigungen vorliegen.

20

4. Polycarbonatformmassen nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die Kohlenwasserstoffe aus 15 bis 100 Kohlenstoffatomen, besonders aus 15 bis 40 Kohlenstoffatomen bestehen und ganz besonders Isopreneinheiten, bevorzugt hydrierte Isopreneinheiten, besonders bevorzugt zu mehr als 90 % hydrierte Isopreneinheiten, ganz besonders bevorzugt zu mehr als 95 % hydrierte Isopreneinheiten enthalten,

25

5. Polycarbonatformmassen nach Anspruch 4, dadurch gekennzeichnet, daß zusätzlich zu den Isopreneinheiten noch 2,3-Dimethylbutadien, Butadien, Propen und/oder Isobuten, im Bereich von 0-50 Mol % (bezogen auf die Isopreneinheiten), enthalten sind.

30

6. Polycarbonatformmassen nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die Kohlenwasserstoffe aus 15, 20, 25, 30, 35 oder 40-C-Atomen bestehen oder Mischungen der vorstehenden Kohlenwasserstoffe sind, ganz besonders bevorzugt Squalan (30 C-Atome).

5

7. ~~Polycarbonatformmassen nach einem der vorstehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß zusätzlich gegebenenfalls andere in Polycarbonat übliche Additive wie z.B. Thermostabilisatoren, UV/IR-Stabilisatoren, andere Entformungsmittel, Flammenschutzmittel, Antidrippingmittel, Gleitmittel,~~
- 10 ~~Fließhilfsmittel, Füllstoffe, Farbmittel wie Pigmenten oder Farbkonzentrate, Glasfasern, Füllstoffe und Blendpartner wie ABS, SAN, EPDM oder Polyester auf Basis von Terephthalsäure und Diolen enthalten sind.~~

8. Formmassen gemäß Anspruch 7, dadurch gekennzeichnet, daß die verwendeten Polycarbonate solche auf Basis von 4,4'-Dihydroxydiphenyl, 1,1-Bis-(4-hydroxyphenyl)-phenyl-ethan, 2,2-Bis-(4-hydroxyphenyl)-propan, 2,2-Bis(3,5-dimethyl-4-hydroxyphenyl)-propan, 1,1-Bis-(4-hydroxyphenyl)-m/p diisopropylbenzol, 1, 1 -Bis-(4-hydroxyphenyl)-cyclohexan und 1,1-Bis-(4-hydroxyphenyl)-3,3,5-trimethylcyclohexan sind.

20

9. Formmassen gemäß Anspruch 7 und/oder 8, dadurch gekennzeichnet, daß die verwendeten Polycarbonate solche auf Basis von 2,2-Bis-(4-hydroxyphenyl)-propan und / oder 1,1-Bis-(4-hydroxyphenyl)-3,3,5-trimethylcyclohexan und / oder 1,1-Bis-(4-hydroxyphenyl)-m/p diisopropylbenzol sind.

25

10. Formteile hergestellt aus den Formmassen gemäß einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 9, besonders optische Datenspeicher, wie CD's, DVD's und deren Weiterentwicklungen, Massivplatten, Hohlkammerplatten, Automobilverschiebungen, Streuscheiben, Leuchtenabdeckungen, ganz besonders bevorzugt CD's, DVD's und deren Weiterentwicklungen.

30

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

IPC 7 C08K5/01 C08L69/00

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

IPC 7 C08K C08L

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

EPO-Internal, CHEM ABS Data, WPI Data

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	EP 0 699 713 A (BAYER AG) 6 March 1996 (1996-03-06) abstract; claims; examples	1-3
A	US 5 018 828 A (OHDAIRA AKIO ET AL) 28 May 1991 (1991-05-28) abstract; claims; examples	1-10

☐ Further documents are listed in the continuation of box C.☒ Patent family members are listed in annex.

* Special categories of cited documents :

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier document but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

13 October 2000

Date of mailing of the international search report

23/10/2000

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Friederich, P

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/EP 00/06178

Patent document cited in search report		Publication date	Patent family member(s)	Publication date
EP 0699713	A	06-03-1996	DE 4430947 A	07-03-1996
			DE 59507239 D	23-12-1999
			JP 8073727 A	19-03-1996
			US 5583174 A	10-12-1996
US 5018828	A	28-05-1991	JP 1884204 C	10-11-1994
			JP 6010684 B	09-02-1994
			JP 62195606 A	28-08-1987
			CA 1290175 A	08-10-1991
			DE 3785470 A	27-05-1993
			DE 3785470 T	09-12-1993
			EP 0234918 A	02-09-1987
			KR 9008606 B	26-11-1990

Translation
19/030843

PCT

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Article 36 and Rule 70)

Applicant's or agent's file reference Le A 33 817.WO Lin	FOR FURTHER ACTION See Notification of Transmittal of International Preliminary Examination Report (Form PCT/IPEA/416)	
International application No. PCT/EP00/06178	International filing date (day/month/year) 03 July 2000 (03.07.00)	Priority date (day/month/year) 13 July 1999 (13.07.99)
International Patent Classification (IPC) or national classification and IPC C08K 5/01, C08L 69/00		
Applicant BAYER AKTIENGESELLSCHAFT		

1. This international preliminary examination report has been prepared by this International Preliminary Examining Authority and is transmitted to the applicant according to Article 36.
2. This REPORT consists of a total of 5 sheets, including this cover sheet.
☐ This report is also accompanied by ANNEXES, i.e., sheets of the description, claims and/or drawings which have been amended and are the basis for this report and/or sheets containing rectifications made before this Authority (see Rule 70.16 and Section 607 of the Administrative Instructions under the PCT).
These annexes consist of a total of sheets.

3. This report contains indications relating to the following items:

- I ☒ Basis of the report
- II ☐ Priority
- III ☐ Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability
- IV ☐ Lack of unity of invention
- V ☒ Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement
- VI ☐ Certain documents cited
- VII ☐ Certain defects in the international application
- VIII ☐ Certain observations on the international application

Date of submission of the demand 05 January 2001 (05.01.01)	Date of completion of this report 21 May 2001 (21.05.2001)
Name and mailing address of the IPEA/EP	Authorized officer
Facsimile No.	Telephone No.

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES

IPK 7 C08K5/01 C08L69/00

Nach der internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)

IPK 7 C08K C08L

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

EPO-Internal, CHEM ABS Data, WPI Data

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	EP 0 699 713 A (BAYER AG) 6. März 1996 (1996-03-06) Zusammenfassung; Ansprüche; Beispiele	1-3
A	US 5 018 828 A (OHDAIRA AKIO ET AL) 28. Mai 1991 (1991-05-28) Zusammenfassung; Ansprüche; Beispiele	1-10

☐ Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen

☒ Siehe Anhang Patentfamilie

* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

"A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

"E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

"L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

"O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benützung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

"P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

"X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden

"Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

"Z" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

13. Oktober 2000

Absendedatum des internationalen Recherchenberichts

23/10/2000

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde

Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Friederich, P

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören:

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 00/06178

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
EP 0699713 A	06-03-1996	DE 4430947 A	07-03-1996
		DE 59507239 D	23-12-1999
		JP 8073727 A	19-03-1996
		US 5583174 A	10-12-1996
US 5018828 A	28-05-1991	JP 1884204 C	10-11-1994
		JP 6010684 B	09-02-1994
		JP 62195606 A	28-08-1987
		CA 1290175 A	08-10-1991
		DE 3785470 A	27-05-1993
		DE 3785470 T	09-12-1993
		EP 0234918 A	02-09-1987
		KR 9008606 B	26-11-1990

V. Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement**1. Statement**

Novelty (N)	Claims	1-10	YES
	Claims		NO
Inventive step (IS)	Claims	1-10	YES
	Claims		NO
Industrial applicability (IA)	Claims	1-10	YES
	Claims		NO

2. Citations and explanations

D1: EP-A-0 699 713 (BAYER AG), 6 March 1996
(1996-03-06)

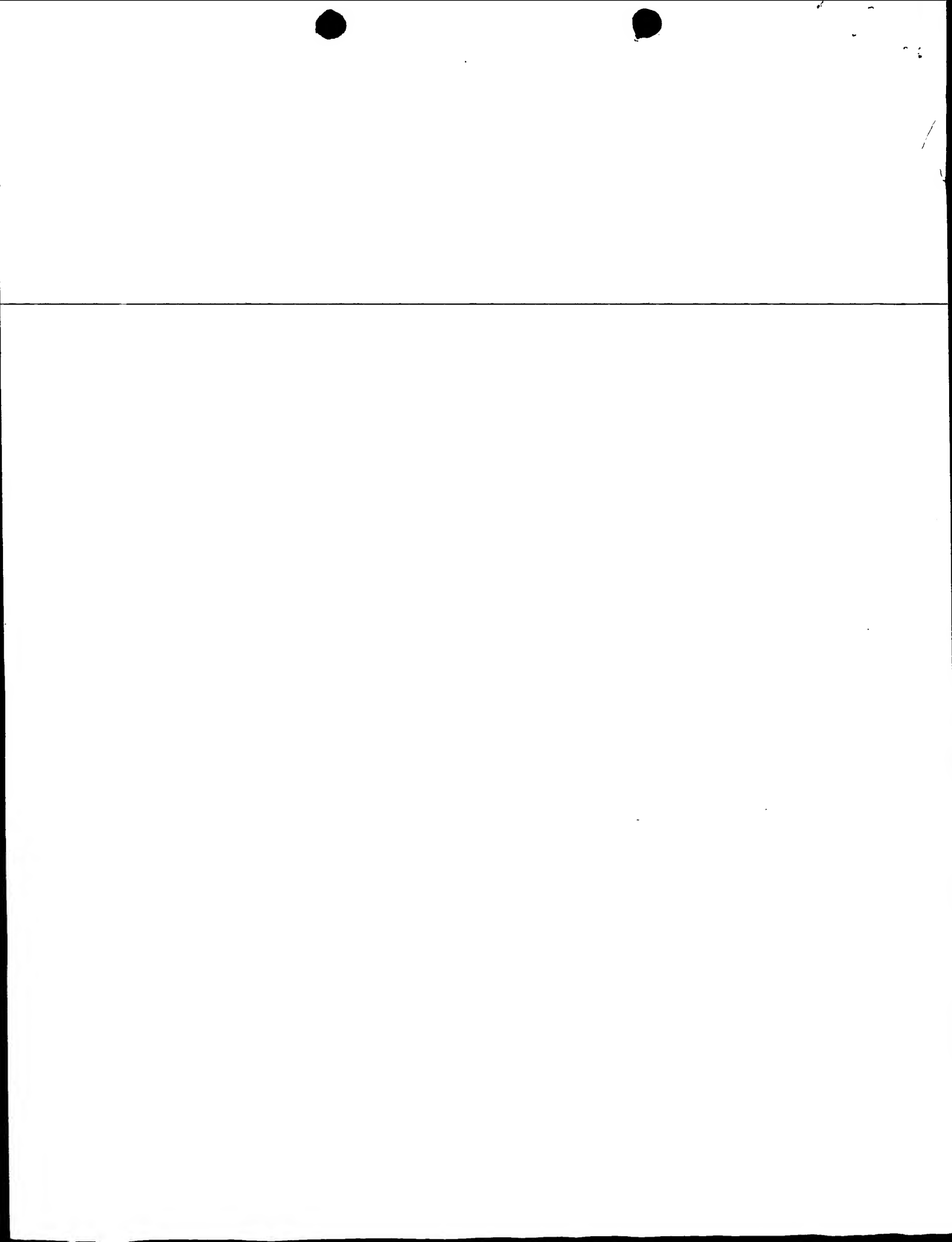
D2: US-A-5 018 828 (OHDAIRA AKIO ET AL.), 28 May
1991 (1991-05-28)

1. The present independent claim concerns polycarbonate moulding compounds containing hydrocarbons with 15-600 carbon atoms and characterised in that the hydrocarbon content ranges from 0.005 to 5.0% by weight, in relation to the weight of the total moulding compound, and in that these hydrocarbons consist of methyl-branched alkane chains, the proportion by weight of the chains ranging from 5% and 30% by weight, in relation to the chain carbons.

According to Claim 6, squalane (30 C atoms) is particularly preferred.

2. D1 discusses mixtures of special polycarbonates and 0.5-15% by weight aliphatic hydrocarbon with a molar weight ranging from 300 to 3,000 g/mole, mineral or paraffin oil being particularly preferred.

According to page 6, lines 6-13, the aliphatic



hydrocarbons are branched or non-branched mixtures of aliphatic or cycloaliphatic hydrocarbons.

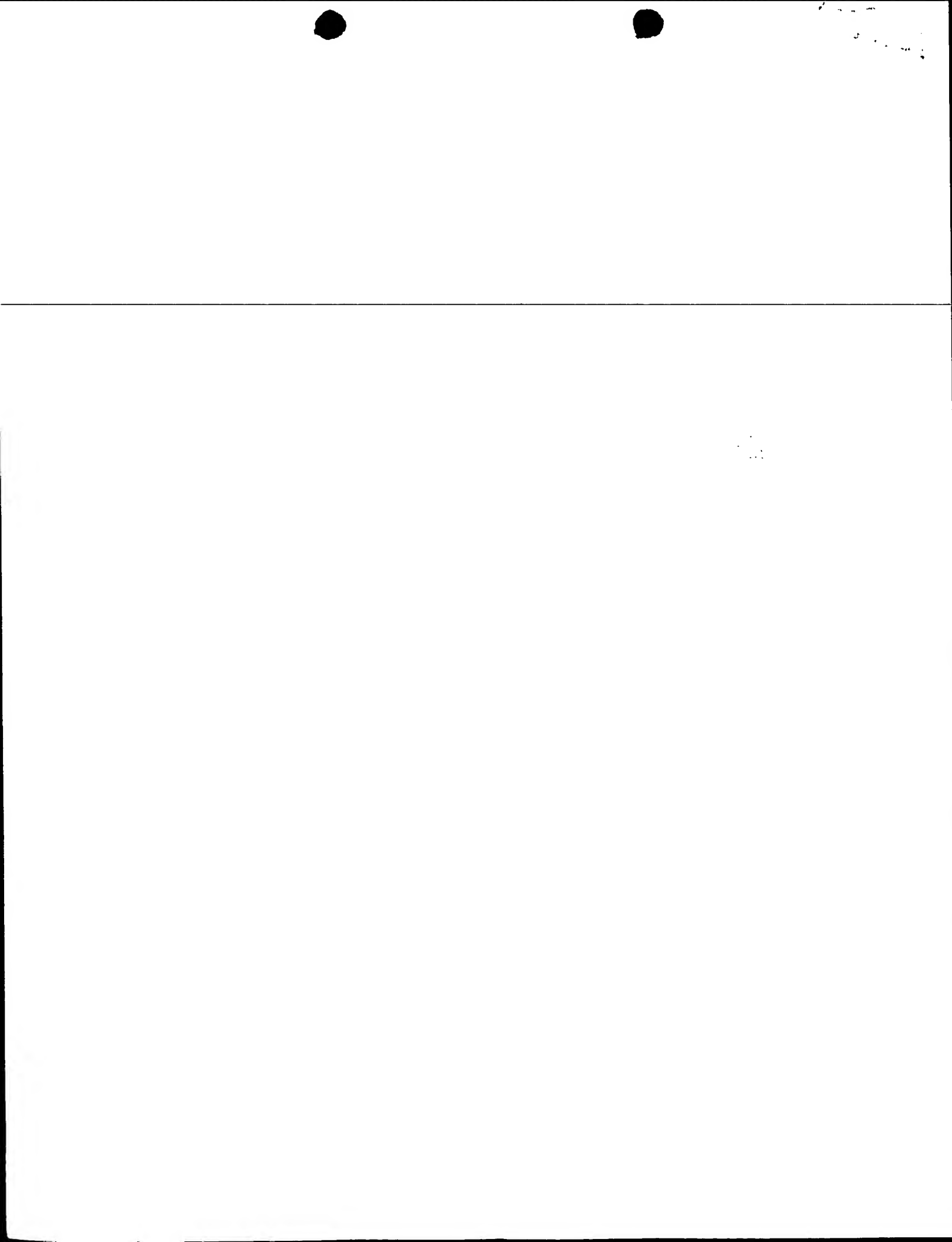
It is noted that the mixtures show improved fluidity with only a slight degradation of dimensional stability under heat, and that if terpolymers with epoxy groups are additionally mixed, impact resistance is further increased.

D1 **does not explicitly** disclose mixtures of polycarbonates and **methyl-branched** alkane chains.

Consequently, the subject matter of Claim 1 should be considered novel.

The problem solved by D1 distinctly differs from the problem addressed by the present application. It consists in removing polycarbonate mouldings from the mould without deforming them (page 2, lines 5-13). A person skilled in the art would therefore have no reason to consider D1 in order to solve the problem in question.

3. D2 describes optical fibres in which the fibre core, which can be made of polycarbonate, is covered with a layer that contains, *inter alia*, squalane. It does not disclose a mixture of polycarbonate and squalane.
4. The subject matter of the independent claim therefore meets the requirements of PCT Article 33(2) and (3).



INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/EP00/06178

I. Basis of the report

1. With regard to the elements of the international application:*

- ☐ the international application as originally filed
- ☒ the description:
pages _____ 1-16 _____, as originally filed
pages _____, filed with the demand
pages _____, filed with the letter of _____
- ☒ the claims:
pages _____ 1-10 _____, as originally filed
pages _____, as amended (together with any statement under Article 19
pages _____, filed with the demand
pages _____, filed with the letter of _____
- ☐ the drawings:
pages _____, as originally filed
pages _____, filed with the demand
pages _____, filed with the letter of _____
- ☐ the sequence listing part of the description:
pages _____, as originally filed
pages _____, filed with the demand
pages _____, filed with the letter of _____

2. With regard to the language, all the elements marked above were available or furnished to this Authority in the language in which the international application was filed, unless otherwise indicated under this item.

These elements were available or furnished to this Authority in the following language _____ which is:

- ☐ the language of a translation furnished for the purposes of international search (under Rule 23.1(b)).
- ☐ the language of publication of the international application (under Rule 48.3(b)).
- ☐ the language of the translation furnished for the purposes of international preliminary examination (under Rule 55.2 and/or 55.3).

3. With regard to any nucleotide and/or amino acid sequence disclosed in the international application, the international preliminary examination was carried out on the basis of the sequence listing:

- ☐ contained in the international application in written form.
- ☐ filed together with the international application in computer readable form.
- ☐ furnished subsequently to this Authority in written form.
- ☐ furnished subsequently to this Authority in computer readable form.
- ☐ The statement that the subsequently furnished written sequence listing does not go beyond the disclosure in the international application as filed has been furnished.
- ☐ The statement that the information recorded in computer readable form is identical to the written sequence listing has been furnished.

4. ☐ The amendments have resulted in the cancellation of:

- ☐ the description, pages _____
- ☐ the claims, Nos. _____
- ☐ the drawings, sheets/fig _____

5. ☐ This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).**

* Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to this report since they do not contain amendments (Rule 70.16 and 70.17).

** Any replacement sheet containing such amendments must be referred to under item 1 and annexed to this report.

VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT
AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS

PCT

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

(Artikel 18 sowie Regeln 43 und 44 PCT)

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts Le A 33 817-WO Lin	WEITERES VORGEHEN siehe Mitteilung über die Übermittlung des internationalen Recherchenberichts (Formblatt PCT/ISA/220) sowie, soweit zutreffend, nachstehender Punkt 5	
Internationales Aktenzeichen PCT/EP 00/06178	Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) 03/07/2000	(Frühestes) Prioritätsdatum (Tag/Monat/Jahr) 13/07/1999
Anmelder BAYER AKTIENGESELLSCHAFT		

Dieser internationale Recherchenbericht wurde von der Internationalen Recherchenbehörde erstellt und wird dem Anmelder gemäß Artikel 18 übermittelt. Eine Kopie wird dem Internationalen Büro übermittelt.

Dieser internationale Recherchenbericht umfaßt insgesamt 2 Blätter.

☒ Darüber hinaus liegt ihm jeweils eine Kopie der in diesem Bericht genannten Unterlagen zum Stand der Technik bei.

1. Grundlage des Berichts

- a. Hinsichtlich der **Sprache** ist die internationale Recherche auf der Grundlage der internationalen Anmeldung in der Sprache durchgeführt worden, in der sie eingereicht wurde, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.

☐ Die internationale Recherche ist auf der Grundlage einer bei der Behörde eingereichten Übersetzung der internationalen Anmeldung (Regel 23.1 b)) durchgeführt worden.

- b. Hinsichtlich der in der internationalen Anmeldung offenbarten **Nucleotid- und/oder Aminosäuresequenz** ist die internationale Recherche auf der Grundlage des Sequenzprotokolls durchgeführt worden, das

☐ in der internationalen Anmeldung in Schriftlicher Form enthalten ist.

☐ zusammen mit der internationalen Anmeldung in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.

☐ bei der Behörde nachträglich in schriftlicher Form eingereicht worden ist.

☐ bei der Behörde nachträglich in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.

☐ Die Erklärung, daß das nachträglich eingereichte schriftliche Sequenzprotokoll nicht über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung im Anmeldezeitpunkt hinausgeht, wurde vorgelegt.

☐ Die Erklärung, daß die in computerlesbarer Form erfaßten Informationen dem schriftlichen Sequenzprotokoll entsprechen, wurde vorgelegt.

2. ☐ Bestimmte Ansprüche haben sich als nicht recherchierbar erwiesen (siehe Feld I).

3. ☐ Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung (siehe Feld II).

4. Hinsichtlich der **Bezeichnung der Erfindung**

☒ wird der vom Anmelder eingereichte Wortlaut genehmigt.

☐ wurde der Wortlaut von der Behörde wie folgt festgesetzt:

5. Hinsichtlich der **Zusammenfassung**

☒ wird der vom Anmelder eingereichte Wortlaut genehmigt.

☐ wurde der Wortlaut nach Regel 38.2b) in der in Feld III angegebenen Fassung von der Behörde festgesetzt. Der Anmelder kann der Behörde innerhalb eines Monats nach dem Datum der Absendung dieses internationalen Recherchenberichts eine Stellungnahme vorlegen.

6. Folgende Abbildung der **Zeichnungen** ist mit der Zusammenfassung zu veröffentlichen: Abb. Nr. ---

☐ wie vom Anmelder vorgeschlagen

☐ keine der Abb.

☐ weil der Anmelder selbst keine Abbildung vorgeschlagen hat.

☐ weil diese Abbildung die Erfindung besser kennzeichnet.

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES
IPK 7 C08K5/01 C08L69/00

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)
IPK 7 C08K C08L

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

EPO-Internal, CHEM ABS Data, WPI Data

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	EP 0 699 713 A (BAYER AG) 6. März 1996 (1996-03-06) Zusammenfassung; Ansprüche; Beispiele ---	1-3
A	US 5 018 828 A (OHDAIRA AKIO ET AL) 28. Mai 1991 (1991-05-28) Zusammenfassung; Ansprüche; Beispiele -----	1-10



Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen



Siehe Anhang Patentfamilie

* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

"A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

"E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

"L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

"O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

"P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

"X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden

"Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

"&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

13. Oktober 2000

Absendedatum des internationalen Recherchenberichts

23/10/2000

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde
Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Friederich, P

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/EP 00/06178

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
EP 0699713 A	06-03-1996	DE 4430947 A	07-03-1996
		DE 59507239 D	23-12-1999
		JP 8073727 A	19-03-1996
		US 5583174 A	10-12-1996
<hr/>			
US 5018828 A	28-05-1991	JP 1884204 C	10-11-1994
		JP 6010684 B	09-02-1994
		JP 62195606 A	28-08-1987
		CA 1290175 A	08-10-1991
		DE 3785470 A	27-05-1993
		DE 3785470 T	09-12-1993
		EP 0234918 A	02-09-1987
		KR 9008606 B	26-11-1990
<hr/>			

